



Université d'Oran 2 Mohamed Ben Ahmed
Faculté des sciences de la Terre et de l'Univers

THESE

Pour l'obtention du diplôme de Doctorat 3^{ème} cycle « L.M.D » en
Sciences de la Terre
Option : Hydrogéologie

**Comportement géochimique des isotopes du Radium et du Radon
et relation avec les teneurs en sulfates dans les systèmes
hydrothermaux de l'Ouest algérien**

Présentée et soutenue publiquement par :
M. Youcef ZEMOUR

Le 18 Janvier 2024

Devant le jury composé de :

HASSANI M. Idriss	Professeur	Université d'Oran 2	Président
MEBROUK Naima	Professeure	Université d'Oran 2	Directrice de thèse
MAYER Adriano	Maître de conférences	Université d'Avignon	Co-Directeur
REMACI Nacéra	Professeure	Université d'Oran 2	Examinatrice
GUENDOUZ Abdelhamid	Professeur	Université de Blida	Examineur

Année 2023-2024

Avant-propos

Pendant les années consacrées à la thèse, il y a souvent eu des événements marquants qui ont été à la fois joyeux et tristes. Malgré ces hauts et ces bas, la patience s'est avérée être la principale source de motivation pour persévérer jusqu'à la fin, **El-Hamdou-li-Allah**.

Je remercie avant tout Allah le Dieu unique, le Grand, le Tout Puissant, le Miséricordieux...

Je suis fier d'annoncer que ce modeste travail est maintenant achevé. Cela n'aurait pas été possible sans la formation universitaire approfondie que j'ai reçue, ainsi que le soutien indéfectible de nombreuses personnes pour lesquelles je suis profondément reconnaissant. Leur solidarité et leur accompagnement ont été essentiels pour mener à bien ce travail, et je leur adresse mes remerciements les plus sincères.

Je tiens particulièrement à exprimer ma gratitude envers ma directrice de thèse, Madame **Naima MEBROUK**, professeure à l'Université d'Oran 2. Sa confiance, sa rigueur, sa patience et sa gentillesse ont été des éléments clés pour m'aider à atteindre mes objectifs. Son soutien moral inconditionnel et ses encouragements incessants ont été une source de motivation pour repousser mes limites et forger mon caractère. Je n'oublierai jamais sa contribution à ce travail et je lui exprime mes plus sincères remerciements.

Je tiens également à exprimer ma gratitude envers Monsieur **Adriano MAYER**, mon co-directeur de thèse, docteur de l'Université d'Avignon. Sa contribution dans le domaine technique lors des analyses de la radioactivité au laboratoire et ses connaissances approfondies dans ce domaine ont été d'une importance cruciale pour l'aboutissement de ce travail.

Je tiens à remercier chaleureusement Monsieur **HASSANI Moulay Idriss**, Professeur à l'Université d'Oran 2 et l'ex-directeur de notre laboratoire de recherche Géoressources, Environnement & Risques Naturels, pour son soutien et son accompagnement tout au long de mon parcours académique. Ses conseils et sa bienveillance ont été pour moi une source d'inspiration et de motivation.

J'exprime mes remerciements aux honorables membres du jury :

- ❖ M. HASSANI Moulay Idriss pour m'avoir fait l'honneur de présider le jury de cette thèse.
- ❖ Mme. REMACI Nacéra de m'avoir accordé le temps et la patience pour évaluer mon travail.

❖ M. GUENDOZ Abdelhamid de m'avoir accordé le temps et la patience pour l'expertise de cette thèse.

Je tiens à remercier vivement M. Mahmoud I. Sherif, docteur à l'université de Chicago (USA) et à l'université de Tanta (Egypte) pour sa collaboration dans la publication scientifique. Son aide, son encouragement, sa disponibilité et ses précieux conseils lors de nos nombreuses réunions en zoom ont contribué à l'avancement et la réalisation de ce travail.

Une reconnaissance un peu spéciale pour Monsieur BOUAICHA Foued docteur à l'université de Constantine 1, pour son aide et ses discussions dont j'ai beaucoup profité pour améliorer mes connaissances dans le domaine de l'hydrochimie des eaux thermales.

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude à Monsieur Bouzid Rabah, Chef de département de la faculté des sciences de la terre, pour ses nombreux services, d'ordre administratif, tout au long de mon cursus universitaire.

Je tiens à remercier chaleureusement tous mes amis de l'université d'Oran 2, avec qui j'ai partagé mes années d'études et de recherche en Licence, Master et Doctorat. Leur soutien moral et leurs encouragements ont été précieux pour moi.

Je ne peux pas non plus oublier les membres de ma famille qui ont soutenu mon parcours, tant sur le plan moral que financier. Je suis particulièrement reconnaissant envers ma maman, mon père, frères et sœurs, qui m'ont encouragé et poussé à persévérer dans les moments difficiles, et qui m'ont donné la force de poursuivre avec la même rigueur tout au long de mes années en géologie.

Enfin, je souhaite remercier tous ceux qui ont contribué, de près ou de loin, à la réalisation de ce travail. Je leur suis reconnaissant de leur soutien.

A tous, Merci
Youcef ZEMOUR

Résumé

Les ressources en systèmes hydrothermaux en Algérie sont abondantes, avec plus de 200 sources réparties à travers le nord du pays. Dans ce travail, ce sont 16 sources thermo-minérales du Nord-Ouest de l'Algérie, qui ont fait l'objet de notre étude. La circulation de ces eaux se fait principalement à travers des failles et des fractures. Cette étude est la première enquête géochimique sur l'occurrence naturelle des isotopes du Radium et du Radon dans les eaux thermales algériennes. Elle vise à mieux comprendre les contrôles géologiques et hydrogéochimiques des isotopes à vie courte et longue du Radium (Ra) et du Radon (Rn).

La température de l'eau varie de 29,4 à 69,1°C, tandis que le pH est globalement neutre à légèrement acide pour quelques échantillons. L'analyse hydrochimique a révélé trois types d'eau principaux : $\text{Cl}^- - \text{Na}^+$, $\text{SO}_4^{2-} - \text{Na}^+ - \text{Ca}^{2+}$, et $\text{HCO}_3^- - \text{Ca}^{2+} - \text{Mg}^{2+}$. La chimie des eaux est principalement contrôlée par la dissolution des carbonates et des évaporites, en particulier la halite.

Les concentrations d'activité de Ra et Rn ont été mesurées pour 16 sources thermales à l'aide de techniques de mesure très sensibles (RadeCC et Rad7). Les échantillons ont montré des activités élevées pour le ^{222}Rn , le ^{224}Ra et le ^{226}Ra , avec des valeurs allant jusqu'à $377 \times 10^3 \text{ Bq/m}^3$, 730 Bq/m^3 et 4367 Bq/m^3 , respectivement. Les activités de radionucléides dans les sources thermales du nord-ouest de l'Algérie se sont avérées plus élevées que dans d'autres pays. Le rapport d'activité $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ indique une origine carbonatée de la radioactivité de l'eau. Le rapport $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$ suggère que les eaux peuvent être mélangées avec des eaux proches de la surface.

Les résultats indiquent que l'excès de SO_4^{2-} limite la concentration aqueuse de Ba et, par conséquent, les activités élevées de Radium dans les systèmes hydrothermaux du nord-ouest de l'Algérie ne sont pas principalement contrôlées par la co-précipitation avec le BaSO_4 (Sulfate de Baryum). Cependant, le SrSO_4 (Sulfate de Strontium) peut partiellement limiter les concentrations du Radium dans les eaux. L'abondance minimale de contenu minéral argileux dans l'aquifère, en plus des activités thermiques, améliore considérablement la mobilisation de Ra en solution. Étant donné que ces eaux sont parfois utilisées pour la boisson, 50% des sources étudiées présentent des activités de Ra combiné à longue durée de vie ($^{226}\text{Ra} + ^{228}\text{Ra}$) dépassant le niveau maximal de contaminant (MCL) de l'OMS et de l'EPA pour l'eau potable.

Mots clés : Source thermique ; Hydrochimie ; Radioactivité ; Radium ; Radon ; Sulfate ; Nord-Ouest algérien

Abstract

The resources of Algeria hydrothermal systems are numerous. More than 200 natural hydrothermal springs are widespread throughout the Northern part of the country. This study focuses on those located in the northwest of Algeria, which are characterized by a great diversity of geothermal manifestations. These waters flow mainly through faults and fractures. Our study differs from previous hydrogeological studies of thermal waters in Algeria, as it presents the first geochemical investigation into the natural occurrence of Radium and Radon isotopes in Algerian hydrothermal waters. It aims to understand the geological and hydrogeochemical controls of short- and long-lived radium isotopes.

The water temperature varies from 29.4 to 69.1°C, while the pH is almost neutral to weakly acidic for some samples. Hydrochemical analysis revealed three main types of water: Cl⁻ – Na⁺, SO₄²⁻ – Na⁺ – Ca²⁺, et HCO₃⁻ – Ca²⁺ – Mg²⁺. The chemistry of the waters is mainly controlled by the dissolution of carbonates and evaporites, particularly halite.

Activity concentrations of Ra and Rn were measured for 16 hydrothermal springs using highly sensitive measurement techniques (RadeCC and Rad7). The samples showed high activities for ²²²Rn, ²²⁴Ra, and ²²⁶Ra, with values up to 377 × 10³ Bq/m³, 730 Bq/m³, and 4367 Bq/m³, respectively. Radionuclide activities in hydrothermal sources in northwest Algeria were found to be higher than in other countries. The ²²⁸Ra/²²⁶Ra activity ratio indicates a carbonate origin of water radioactivity. The ²²²Rn/²²⁶Ra ratio suggests that the waters may be mixed with shallow groundwaters.

Results indicate that excess SO₄²⁻ limits the aqueous concentration of Ba and, therefore, the high Radium activities in hydrothermal systems in northwest Algeria are not primarily controlled by co-precipitation with BaSO₄. However, SrSO₄ may partially limit Radium concentrations in the waters. The minimal abundance of clay mineral content in the aquifer, in addition to thermal activities, significantly enhances Ra mobilization into solution. As these waters are sometimes used for drinking, 50% of the studied springs exhibit combined long-lived Ra (²²⁶Ra + ²²⁸Ra) activities exceeding the maximum contaminant level (MCL) of WHO and EPA for drinking water.

Keywords : Hydrothermal spring ; Hydrochemistry ; Radioactivity ; Radium ; Radon ; Sulfate ; Northwestern Algeria

ملخص

تتعدد موارد الأنظمة الحرارية المائية في الجزائر. ينتشر أكثر من 200 منبع طبيعي مائي معدني حراري في جميع أنحاء التراب الجزائري الشمالي. هذه الدراسة ركزت على تلك الموجودة في الجزء الشمالي الغربي من الجزائر الذي يتميز بالعديد من مظاهر الطاقة الحرارية الأرضية. يتم تصريف هذه المياه من العمق إلى السطح بشكل أساسي عبر الصدوع والكسور. بشكل غير مألوف عن الدراسات الهيدروجيولوجية للمياه الحرارية في الجزائر، تختلف هذه الدراسة لهذه الموارد نوعا ما. يقدم هذا العمل أول تحقيق جيوكيميائي عن التواجد الطبيعي لنظائر الراديوم والرادون في المياه الحرارية المائية الجزائرية. تهدف الدراسة إلى فهم الضوابط الجيولوجية والهيدروجيولوجية للنظائر قصيرة العمر وطويلة العمر للراديوم (الرادون 222، الراديوم 223، الراديوم 224، الراديوم 226 والراديوم 228). تتراوح درجة حرارة الماء من 29.4 إلى 69.1، وبالنسبة لغالبية العينات يكون الرقم الهيدروجيني للماء قريباً من الحياد. كشف التحليل الهيدروكيميائي للماء عن ثلاثة أنواع رئيسية من الماء مياه كلورية، مياه كبريتية ومياه بيكربونات. يتم التحكم في كيمياء المياه بشكل أساسي عن طريق إذابة الكربونات والتمبخرات.

تم استخدام تقنيات قياس عالية الحساسية للكشف عن أنشطة الرادون والراديوم (Rad و RaDeCC) لستة عشر منبع مائي معدني حراري. أظهرت العينات أنشطة عالية لا سيما بالنسبة للرادون 222، الراديوم 224 والراديوم 226 (حتى $10^3 \times 377$ بيكريل / م³ و 730 بيكريل / م³ و 4367 بيكريل / م³ على التوالي). تفوق أنشطة النويدات المشعة في الينابيع الحرارية المائية في شمال غرب الجزائر أنشطة الينابيع الحرارية الأخرى في العالم. الاختلال الإشعاعي بين العناصر باستخدام نسبة نشاط الراديوم والرادون كبير نسبياً، مما يشير إلى تأثير جيولوجيا الخزان على تركيبات النشاط الإشعاعي. نفس الشيء مع نتيجة الذوبان الكيميائي، تشير نسبة الراديوم 228/الراديوم 228 إلى أصل الصخور الكربونية للنشاط الإشعاعي للماء. الراديوم 226 يمكن أن يتفاعل كيميائياً عكس الرادون، والذي يمكن أن يتسرب بسرعة من خلال الكسور. تشير نسب الرادون 222/الراديوم 226 إلى أنه يمكن خلط المياه الحرارية مع المياه القريبة من السطح. يشير الارتباط الملحوظ بين نظائر الراديوم وملوحة المياه إلى أن عمليات الامتزاز / الامتصاص لا تتحكم في توزيع الراديوم في المياه. تظهر النتائج إلى أن الكبريتات الزائدة تحد من التركيز المائي للباريوم، وبالتالي، فإن أنشطة الراديوم المرتفعة في شمال غرب الجزائر لا يتم التحكم فيها بشكل أساسي عن طريق الترسيب المشترك مع الباريت. ومع ذلك، قد يحد السيليسيتين جزئياً من تركيبات الراديوم في المياه. من المحتمل أن تهيمن عملية الارتداد للنويدات الأم في المواد الصلبة للخزان الجوفي على أنشطة الراديوم. إن الحد الأدنى من وفرة المحتوى المعدني الطيني في الخزان الجوفي بالإضافة إلى الأنشطة الحرارية يعزز بشكل كبير من تعبئة الراديوم في المحلول. من وجهة نظر صحية ونظراً لاستخدام هذه المياه في بعض الأحيان للشرب، فإن 50٪ من الينابيع التي تم فحصها أظهرت أنشطة من الراديوم طويل العمر المشترك (الراديوم 226 + الراديوم 228) بما يزيد عن الحد الأقصى لمستوى الملوثات (MCL) لمنظمة الصحة العالمية ووكالة حماية البيئة لمياه الشرب. تم اقتراح نموذج مفاهيمي يلخص العوامل الرئيسية التي تتحكم (الحد / التعزيز) للنويدات المشعة للأنظمة الحرارية المائية في شمال غرب الجزائر.

الكلمات المفتاحية: منبع مياه معدنية حارة ؛ الكبريتات ؛ هيدروجيوكيمياء ؛ النشاط الإشعاعي ؛ الراديوم ؛ الرادون ؛ شمال غرب الجزائر

I. INTRODCUTION

La radioactivité est un phénomène naturel qui est présent dans les roches et les sols du monde entier, et qui peut être transféré aux eaux souterraines en fonction de la géologie, des caractéristiques du sol et de la minéralogie des régions. Les niveaux de radioactivité dans les eaux souterraines peuvent varier en fonction de plusieurs facteurs, tels que la composition géologique de la région, la profondeur de l'aquifère, la présence de sources de radiation naturelle et la présence d'activités anthropiques telles que l'exploitation minière et/ou les tests nucléaires.

Le Radium et le Radon sont des éléments radioactifs naturels. Le Radium est composé de quatre éléments radioactifs, dont deux principaux, le ^{226}Ra et le ^{228}Ra , qui se trouvent respectivement dans les chaînes de désintégration de l'Uranium 238 (^{238}U) et du Thorium 232 (^{232}Th). En raison de sa proximité chimique avec le Baryum et le Calcium, ainsi que de sa forte mobilité dans l'hydrosphère, le Radium est considéré comme un élément essentiel à prendre en compte en radioprotection en raison de sa forte occurrence naturelle dans les eaux profondes et dans de nombreuses sources potentielles dans l'environnement. En conséquence, une compréhension approfondie du cycle hydrogéochimique du Radium et du Radon est nécessaire pour modéliser leur comportement et leur mobilité dans l'hydrosphère.

Les radioéléments, y compris les isotopes du Radium (^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{224}Ra et ^{223}Ra) et le Radon (^{222}Rn), sont présents dans la nature dans des grandeurs et proportions variables, notamment dans les eaux souterraines. Leur connaissance et leur comportement permettent leur utilisation comme traceurs pour étudier différents processus hydrogéochimiques (tels que l'interaction eau-roche, les proportions de mélange et le temps de séjour) et biogéochimiques (tels que le transport de nutriments en milieu aqueux). Ces radioéléments sont les plus utilisés pour étudier les eaux souterraines et occupent une place de choix.

L'application des isotopes de Ra et de Rn comme traceurs de processus hydrologiques, géologiques et biologiques est largement connue. Grâce à leurs différentes périodes ou demi-vies ($t_{1/2}$) et leurs origines, chaque isotope du Radium, à savoir ^{226}Ra ($t_{1/2} = 1\ 600$ a, de la chaîne de ^{238}U), ^{228}Ra ($t_{1/2}=5,75$ a) et ^{224}Ra ($t_{1/2}=3,66$ j), tous deux de la chaîne de ^{232}Th , et ^{223}Ra ($t_{1/2}=3,66$ j, de la chaîne de ^{235}U), ainsi que ^{222}Rn ($t_{1/2}=3,825$ j, de la chaîne de ^{238}U), fournit des informations importantes sur des processus géochimiques dans des environnements variés et à différentes échelles de temps. Toutefois, l'application de ces isotopes est principalement limitée aux environnements hydrothermaux ou hautement minéralisés en raison de leur abondance élevée (e.g. Rihs et al., 2000; Sturchio et al., 2001 ; Rihs and Condomines, 2002 ; Condomines et al., 2014; Tomita et al., 2014).

Néanmoins, l'utilisation des isotopes de Ra et de Rn en tant que traceurs naturels dans les systèmes hydrothermaux demeure peu répandue.

Les sources d'eau chaude et les eaux minérales sont des ressources naturelles d'une grande valeur à l'échelle mondiale. Leur importance découle principalement de leur utilisation à des fins médicales, telles que la thérapie hydrothermale, ainsi que pour le tourisme, les loisirs et la réadaptation. En Algérie, il existe plus de 200 sources d'eau chaude, principalement localisées dans la partie nord du pays. Plusieurs études ont été menées en Algérie sur les eaux thermales (Guigue, 1940 ; Verdeil, 1982 ; Fekraoui, 2007 ; Belhai et al., 2016 ; Ait Ouali et al., 2019 ; Issaadi, 1992 ; Bouchareb-Haouchine, 2012 ; Kedaid, 2007 ; Saibi, 2009, 2015 ; Chenaker et al., 2018 ; Bouaicha et al., 2019). Ces études ont principalement porté sur l'analyse hydrogéochimique de ces systèmes d'eau.

Les activités du Radium et du Radon dans les eaux souterraines devraient être sérieusement prises en considération. L'exposition à ces nucléides produit des effets à long terme sur la santé humaine car ces radionucléides sont classés comme cancérigènes (IARC, 2013). Le Radium pénètre dans le corps humain et s'accumule dans les os et les dents et devient une source d'irradiation corporelle, affaiblissant et cassant les os (Fajardo et al., 2001; AIEA, 2010). De plus, le Radon est le deuxième contributeur principal au cancer du poumon après le tabac (OMS, 2006). En raison des risques potentiels du Radium pour la santé, sa concentration dans les eaux de surface et souterraines est surveillée en permanence dans le cadre des programmes de qualité de l'eau des agences environnementales internationales.

L'approche géochimique du Radium et du Radon et l'étude de leurs comportements dans les eaux souterraines sont abordés dans cette étude pour la première fois en Algérie, précisément pour les sources thermales. Cette thèse est consacrée à l'étude du comportement géochimique de ces deux éléments radioactifs naturels, le Radium et le Radon, et leur rôle potentiel comme traceurs des différents processus hydrogéochimiques affectant les systèmes hydrothermaux de l'Ouest algérien.

II. Problématique et objectifs

Ce projet vise à combiner l'utilisation de radionucléides naturels à courtes et longue périodes en tant que traceurs de la zone source de l'hydrothermalisme. Le travail combinera l'analyse de l'activité de ces radionucléides à des données géochimiques, et une analyse détaillée des données hydrogéologiques et géologiques existantes, dans le contexte des sources thermales de l'Ouest algérien. Ces radio-isotopes ont actuellement un grand intérêt en hydrogéologie, car on peut les considérer comme des chronomètres de l'interaction eau-roche.

Comme mentionné ci-dessus, différentes études récemment publiées, ont montré que les eaux thermales sont très enrichies en ces radionucléides. La signification et les raisons de ces enrichissements ne sont pas bien connues, d'où l'intérêt de cette étude pour mieux comprendre le comportement du Radium et du Radon dans les systèmes hydrothermaux, et le contrôle hydrogéochimique que ces isotopes radioactifs exercent sur les systèmes hydrothermaux étudiés.

Le phénomène de salinisation des eaux souterraines, incluant les systèmes hydrothermaux de l'ouest de l'Algérie, est souvent dû à la forte présence des évaporites et dissolutions des minéraux carbonatés. Ce processus aurait une répercussion directe sur les isotopes du Radium, et donnerait donc une eau riche en Radium et pauvre en Radon.

Parallèlement, en présence de fortes concentrations de sulfate dans les eaux thermales, la formation de composés insolubles tels que la Barytine et la Célestine peut entraîner une précipitation du sulfate. Cette précipitation peut entraîner une co-précipitation du Radium avec ces minéraux, réduisant ainsi sa concentration dans l'eau. Toutefois, cette co-précipitation peut également augmenter la concentration en Radon dans l'eau. Ces actions et réactions permettent d'étudier et de mieux comprendre les processus géochimiques impliqués dans les systèmes hydrothermaux, en utilisant le Radium comme traceur.

A cet égard, la présente étude a donc pour objectif de mieux comprendre les mécanismes géologiques et hydrochimiques influençant la distribution des radionucléides Rn et Ra dans les eaux thermales du Nord-Ouest de l'Algérie. Elle vise également à caractériser pour la première fois les concentrations d'activité de ces radionucléides (c'est-à-dire ^{223}Ra , ^{224}Ra , ^{226}Ra , ^{228}Ra et ^{222}Rn) dans ces systèmes hydrothermaux, ainsi qu'à évaluer les impacts potentiels sur la santé humaine, liés à la consommation de ces eaux en raison de leur forte radioactivité. Les résultats de cette étude sont considérés comme une empreinte de reconnaissance du système hydrothermal actuel, pouvant être utilisé comme référence pour d'autres études, afin d'évaluer les changements dans les concentrations d'activité de ces radionucléides, pour une meilleure gestion de cette importante ressource en eau en Algérie.

L'objectif final est également de synthétiser les processus affectant les radio-isotopes le long du parcours souterrain profond et d'extraire le plus d'informations qu'il est possible de tirer sur les systèmes hydrothermaux, à l'aide des isotopes radioactifs de la série de l'Uranium-238, Thorium-232 et l'Uranium-235.

III. Structure du manuscrit

Pour parvenir aux fins de cette étude, ce manuscrit a été structuré en deux grandes parties. Chaque partie comprend 3 chapitres. Une conclusion générale résume les résultats de ce travail.

PARTIE I

Exploration des systèmes hydrothermaux du Nord-Ouest algérien : perspectives géologiques, hydrogéologiques et hydrogéochimiques

Chapitre 1 : Ce chapitre donne une description générale de la géologie régionale et locale de la région d'étude.

Chapitre 2 : Il consiste en une description générale des systèmes hydrothermaux du nord-ouest algérien, dans leur contexte géologique, hydrogéologique, lithologique et morpho structural.

Chapitre 3 : Ce chapitre englobe une analyse hydrochimique détaillée des eaux thermales étudiées ainsi que les mécanismes physico-chimiques régissant l'évolution de leurs principaux éléments.

PARTIE II

Caractérisation de la radioactivité et des radionucléides dans les systèmes hydrothermaux du Nord-Ouest algérien : méthodologies d'analyse, étude des isotopes du Radium et du Radon dans les eaux, et impact des sulfates sur la géochimie du Radium

Chapitre 4 : Il est divisé en deux sections :

Section 1 : donne une description générale des processus de désintégration radioactive et du comportement naturel des isotopes de Ra et de Rn en milieu aqueux.

Section 2 : décrit les méthodes de mesure de ces radionucléides dans les eaux.

Chapitre 5 : Ce chapitre présente les principaux résultats de la radioactivité du Radium et du Radon dans les eaux thermales étudiées, leur analyse détaillée ainsi que leur interprétation.

Chapitre 6 : Ce chapitre met en exergue l'impact des composés insolubles du sulfate sur la distribution de la radioactivité du Radium dans les eaux thermales.

Conclusion générale, Synthèse et Modèle schématique du comportement des radionucléides dans les systèmes hydrothermaux du NW Algérien

PARTIE I

Exploration des systèmes hydrothermaux du Nord-Ouest algérien : perspectives géologiques, hydrogéologiques et hydrogéochimiques

Chapitre I

Synthèse géologique régionale et locale

I. Éléments clés de la géologie de l'Afrique du Nord : aperçu et analyse

L'Afrique du Nord est la région qui couvre les pays maghrébins (Maroc, Algérie, Tunisie). Cette région est située au Nord du Craton Africain, qui est une lithosphère continentale très ancienne formée pendant l'ère précambrienne.

Au cours de l'histoire géologique de l'Afrique du Nord, trois grandes phases tectoniques ont façonné la région. La première phase correspond à la tectonique hercynienne, qui s'est produite au cours du Paléozoïque (entre environ 350 et 250 millions d'années). Cette phase a conduit à la formation de chaînes de montagnes dans la région, notamment dans le massif de l'Atlas.

La deuxième phase tectonique s'est produite au cours du Mésozoïque (entre environ 250 et 65 millions d'années). Cette phase est marquée par l'ouverture de l'océan atlantique et la séparation de l'Afrique et de l'Amérique du Sud. Elle a également conduit à la formation de chaînes de montagnes, notamment dans le massif des Aurès.

La troisième phase tectonique est la plus récente et s'est produite au cours du Cénozoïque (depuis environ 65 millions d'années). Cette phase est marquée par la collision entre la plaque africaine et la plaque eurasiatique, qui a conduit à la formation de la chaîne de montagnes de l'Atlas qui s'étend sur environ 2400 km à travers le Maroc, l'Algérie et la Tunisie et à la formation de bassins sédimentaires dans la région.

Les éléments structuraux majeurs de l'Afrique du Nord, du nord au sud, sont les suivants (Fig.1) :

I.1. Domaine Tello-Rifain :

Il s'agit d'un domaine tectonisé d'une portion jeune et mobile de la chaîne alpine, correspondant en grande partie à la zone des nappes de glissement mises en place durant le Tertiaire (Miocène). Ce domaine a connu au cours du cycle alpin la formation de bassins losangiques et en "pullapart" nés sur des décrochements crustaux ou lithosphériques (Choukroune et Séguret, 1973). Trois grandes unités tectoniques individualisées dans le domaine Tello-Rifain, la zone externe tello-rifaine qui est constituée par des massifs autochtones et par quelques unités allochtones, la zone kabylo-rifaine et la zone des flyschs qui forment des nappes de charriage du Jurassique moyen à Miocène dans l'ensemble du domaine tello-rifain.

I.2. Domaine atlasique :

Ce domaine est formé par des chaînes intracontinentales et des moles rigides. Il est bordé au Nord par l'ensemble de la meseta oranaise et le domaine tlemcenien. Sa partie méridionale est formée de l'Ouest à l'Est par le Haut-Atlas, l'Atlas saharien et l'Atlas tunisien. Il sépare la partie

septentrionale du domaine atlasique en deux ensembles qui sont la meseta marocaine à l'Est du Maroc et la meseta oranaise au Nord-Ouest de l'Algérie. Cette dernière comporte une couverture secondaire et tertiaire plus développée. Elle se termine à l'Est en pointe entre l'Atlas saharien et le domaine tellien par la zone modérément tectonisée des Monts du Hodna.

I.3. Domaine saharien :

Il correspond à la plate-forme saharienne qui représente la partie la plus stable de l'Afrique du Nord, appartenant à la plaque africaine d'âge paléozoïque et qui affleure largement autour des boucliers précambriens ou dans la chaîne de l'Ougarta. Il est limité par l'accident Nord-saharien que l'on peut suivre d'Est en Ouest sur plus de 2000 km.

II. Géologie et Structurale de l'Algérie septentrionale :

Deux manifestations tectoniques du domaine Maghrébides ont abouti à l'individualisation de la structure de l'Algérie tellienne. Ce sont l'orogénèse hercynienne et l'orogénèse alpine (Fig.1).

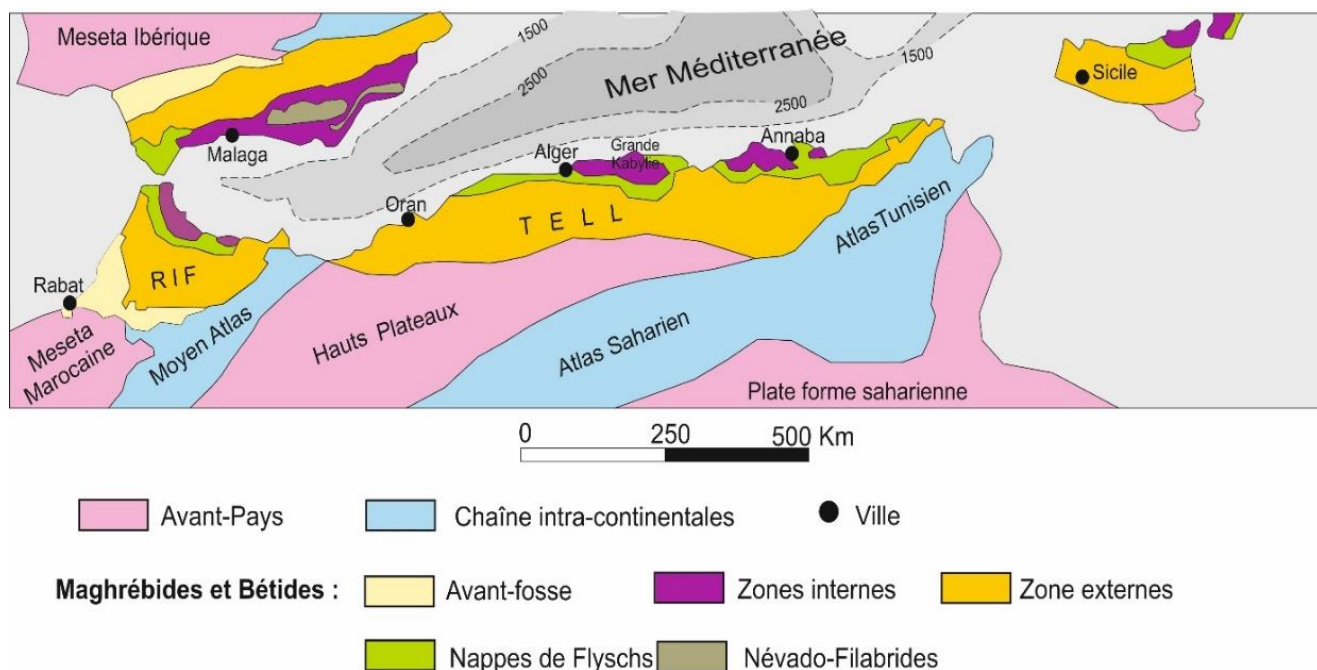


Fig. 1. Schéma structural des chaînes alpines de la Méditerranée occidentale (Durand Delga et Fontbote, 1980)

Nous distinguons du Nord au Sud :

II.1. Le domaine Tellien

Le domaine Tellien est une région géologique importante qui fait partie de la chaîne de montagnes des Maghrébides, qui elle-même appartient à l'orogène alpin périméditerranéen (Durand Delga,

1969). Cette région est située dans le Nord de l'Afrique, et s'étend sur plus de 2000 km d'Ouest en Est, de l'Atlantique à la mer Ionienne.

Le domaine Tellien est caractérisé par un orogène en forme d'anneau aplati et allongé d'Est en Ouest, qui est représenté par différentes formations géologiques dans différents pays de la région. Au Maroc, il est représenté par le Rif marocain, qui est une chaîne de montagnes importante qui s'étend sur environ 350km le long de la côte méditerranéenne. En Espagne, il est représenté par les Cordillères bétiques, qui sont une chaîne de montagnes située dans le sud de l'Espagne et qui s'étend sur plus de 800 km le long de la côte méditerranéenne. En Italie, les formations géologiques du domaine tellien affleurent en Sicile, une île située au sud de l'Italie.

En Algérie, le domaine Tellien est représenté par plusieurs chaînes de montagnes, dont les plus importantes sont les monts de Tlemcen, le massif du Dahra, le massif de Collo, le massif de l'Aurès, le massif de Belezma et les montagnes de Kabylie. Ces chaînes de montagnes s'étendent sur une grande partie du territoire algérien, depuis la frontière marocaine jusqu'à la mer Méditerranée.

Sa géologie complexe et ses formations variées sont le résultat de l'interaction de nombreux processus géologiques différents, et offrent une fenêtre fascinante sur l'histoire géologique de la région.

La structure complexe de ce domaine en Algérie comprend :

II.1.1. *Tell septentrional* : Le Tell septentrional correspond à la bande côtière de l'Algérie, qui s'étend sur environ 700 km de l'Ouest à l'Est, depuis la frontière marocaine jusqu'à la frontière tunisienne. Il est constitué par les massifs anciens ou noyaux kabyles autochtones, qui sont des massifs primaires essentiellement métamorphiques, ainsi que par la dorsale kabyle qui est la couverture mésozoïque et éocène du socle ancien des noyaux kabyles. Les flyschs se présentent soit sous la dorsale kabyle, soit sur l'oligocène en contact anormal. Le Tell septentrional est compris entre le rivage méditerranéen et le sillon miocène Chéelif-Soummam. Il s'agit d'une région très accidentée, marquée par des reliefs montagneux, des vallées encaissées et des plateaux, qui s'étendent sur une bande de 100 à 150 km de largeur. Les massifs les plus importants du Tell septentrional sont le Djurdjura, l'Ouarsenis et les monts de Tlemcen.

II.1.2. *Tell méridional* : Il s'agit d'une zone située au sud du sillon Chéelif-Soummam, qui s'étend sur environ 400km de largeur. Il comporte l'Ouarsenis, les Babors et les monts de Constantine, poussés vers le Sud lors de la compression alpine, du Sud vers le Nord. Nous y distinguons :

L'autochtone, caractérisé par des plis à grand rayon de courbure et des faciès crétacés néritiques, ainsi que des formations oligo-miocènes épaisses.

Le parautochtone (subautochtone) présente des faciès similaires mais une tectonique d'écaillage. Quant à l'allochtone, il est constitué d'un empilement de nappes avec des faciès de plus en plus externes vers le haut.

II. 2. Le domaine présaharien

Le domaine présaharien en Algérie est constitué des hauts plateaux, qui s'étendent entre le Tell et le Sahara.

II. 2. 1. Les hauts plateaux ou les hautes plaines

Les hauts plateaux sont une vaste région d'altitude moyenne, de 1000 à 1300 mètres environ. Les hauts plateaux ou les hautes plaines ne font pas partie du domaine présaharien mais constituent l'avant-pays des chaînes alpines en Algérie.

Cet avant-pays, appelé autochtone sud tellien, est constitué de formations jurassiques et crétacées pélagiques au Nord, et néritiques ainsi que zoogènes au Sud. Les hautes plaines oranaises, algéroises et constantinoises font partie de cette zone autochtone.

II.2. 2. L'Atlas Saharien

L'Atlas saharien est une chaîne de montagnes qui s'étend du Maroc jusqu'en Tunisie, en passant par l'Algérie. Elle constitue une zone de transition entre les massifs de l'Atlas tellien au Nord et le désert du Sahara au Sud. L'Atlas saharien est caractérisé par des reliefs peu élevés, souvent tabulaires, et des plateaux entaillés par des vallées fluviales. Les roches qui le composent sont principalement des sédiments datant du Paléozoïque au Cénozoïque, avec des niveaux de roches volcaniques et des intrusions granitiques.

L'Atlas Saharien est constitué de plusieurs chaînons s'étendant d'Est en Ouest : les Nememcha, les Aurès, le Hodna, les Monts des Ouled Naïl, le Djebel Amour et le Djebel Ksour. Il s'est formé à partir d'un sillon subsident situé entre les hauts plateaux, formant ainsi une chaîne montagneuse intra-cratonique. En Tunisie, l'équivalent de l'Atlas Saharien est l'Atlas tunisien, et au Maroc, il s'agit du Haut et du Moyen Atlas marocains.

II. 3. Structure du domaine des Maghrébides

Le domaine des Maghrébides est une chaîne de montagnes qui s'étend sur plus de 2000 km dans la région périméditerranéenne, de l'Atlantique à la mer Ionienne en Italie. Sa structure est très

complexe en raison de son histoire géologique et de la collision de plusieurs plaques tectoniques. En Algérie, la structure de ce domaine est constituée par des unités telliennes qui appartiennent à trois domaines paléogéographiques distincts, ce sont du Nord au Sud (Fig. 2) :

II. 3.1. La zone interne

La zone interne correspond à l'ensemble des massifs anciens ou noyaux kabyles autochtones, qui sont des massifs primaires essentiellement métamorphiques, ainsi que la chaîne calcaire ou dorsale kabyle qui est la couverture méso-cénozoïque du socle ancien des noyaux kabyles.

Elle est caractérisée par la présence de massifs anciens, tels que le massif de Ténès, le massif de Chenoua, le massif d'Alger, le massif de Grande Kabylie, le massif de Petite Kabylie et l'Eddough. Ces massifs sont composés de socle cristallin métamorphique, de roches paléozoïques non métamorphiques et d'une dorsale kabyle ou chaîne calcaire.

D'après [Bouillin \(1977\)](#), le socle kabyle se compose de deux ensembles : un ensemble supérieur dominé par des schistes satinés et des formations de schistes noirâtres, de grès et de calcaires, et un ensemble inférieur composé de gneiss, de marbres et d'amphibolites.

À la bordure sud de ce socle, la dorsale kabyle, quant à elle, présente une couverture mésozoïque allant du Permo-Trias à l'Oligocène. Cette couverture sédimentaire est principalement carbonatée et peu métamorphique. La zone interne des Maghrébides est donc constituée d'un socle cristallin et de formations sédimentaires relativement peu déformées et peu métamorphisées.

II.3.2. Le domaine des Flyschs

Les flyschs sont des dépôts silico-clastiques profonds liés à un environnement océanique et forment une zone continue au sud des massifs anciens littoraux. D'après [Wildi \(1983\)](#), ce domaine correspond à un secteur marin profond et mobile du Jurassique moyen au Burdigalien. Les flyschs se subdivisent en trois unités : maurétanienne, massylienne et numidienne.

Les flyschs maurétaniens se composent de sédiments datant de l'Hauterivien à l'Eocène inférieur et peuvent être affectés par un métamorphisme syn-schisteux. Les flyschs massyliens se composent de sédiments allant du Néocomien au Lutétien, formés d'argiles quartzitiques, de pelites microbréchiques et de microbrèches. L'unité numidienne montre une alternance de grès et d'argiles. Elle s'est formée pendant l'Aquitaniens et le Burdigalien inférieur.

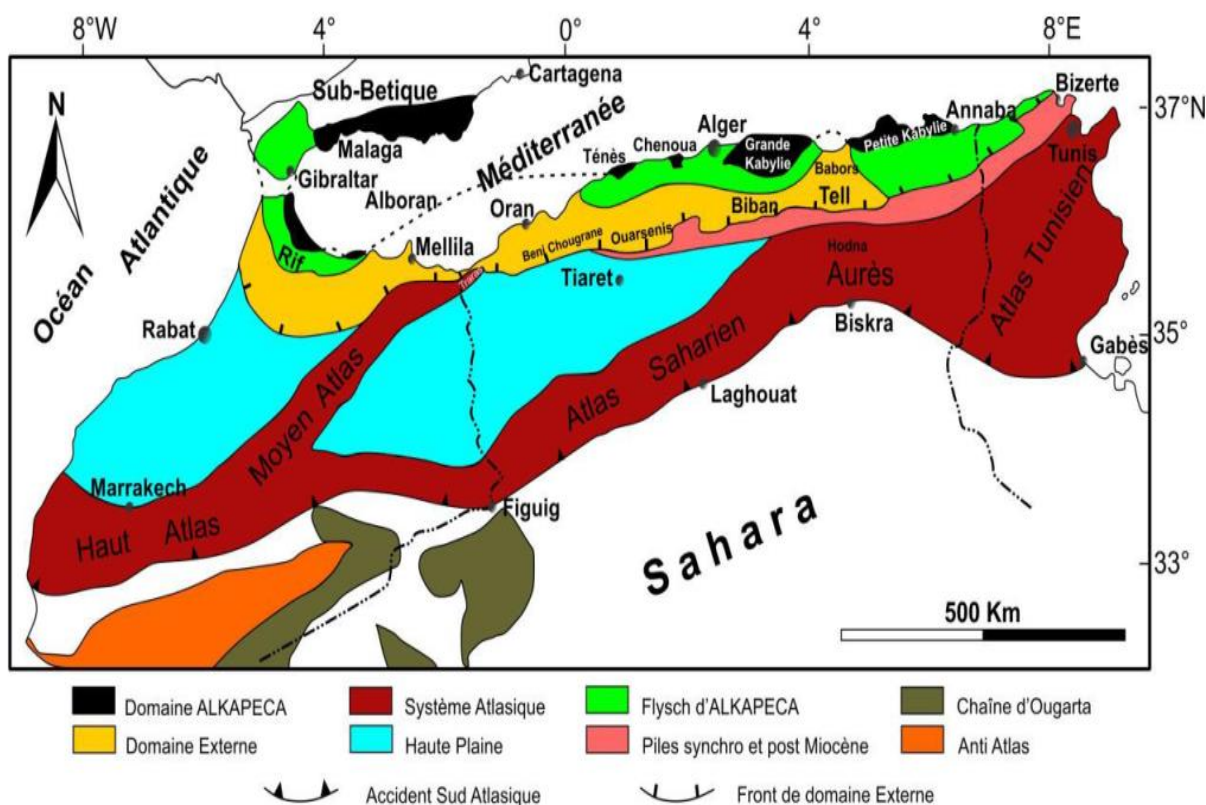


Fig. 2. Grands traits géographiques de la chaîne alpine Nord-africaine (Benest, 1985)

II.3.3. Le domaine externe

C'est une zone géologique située entre le domaine interne et l'avant-pays pré-atlasique en Algérie. Cette zone est constituée de différentes unités géologiques, notamment des unités enracinées et de décollement. Certaines de ces nappes ont subi un épimétamorphisme d'âge Albien. On peut distinguer trois grandes entités géologiques dans ce domaine externe :

L'autochtone à schistosité ou parautochtone du Tell : il s'agit de massifs à schistosité formés par le littoral oranais, Cheliff, Dahra-Boumaad (également appelé autochtone Nord tellien), Blida et Babors. Ces massifs sont considérés comme autochtones ou parautochtones, c'est-à-dire qu'ils ont subi une déformation interne et sont restés en place.

L'autochtone intra-tellien : il est constitué par les massifs des Bibans et de l'Ouarsenis, également appelés Amrouna. Ces massifs sont situés à l'intérieur du Tell et ont également subi une déformation interne.

Les nappes telliennes : il s'agit d'ensembles allochtones, c'est-à-dire qu'ils ont été désolidarisés de leur substratum et déplacés par gravité au cours du Miocène inférieur. Ces nappes se sont superposées aux unités autochtones et intra-telliennes et sont responsables de la structure complexe du domaine externe.

II.3.4. L'avant pays des séries autochtones et para-autochtones dans l'Ouest et le centre du pays

Il correspond aux formations calcaires et marneuses de la plateforme néritique et du domaine atlasique. Il comporte l'avant pays allochtone et l'avant pays autochtone (Vila, 1980).

L'avant-pays des séries autochtones et para-autochtones dans l'Ouest et le centre du pays est une zone géologique complexe qui se situe entre les séries autochtones et para-autochtones d'une part, et la plateforme néritique et le domaine atlasique d'autre part. Cette zone est principalement composée de formations calcaires et marneuses, qui ont été déposées sur une couche de roches plus anciennes. Les formations dans cette zone ont été plissées et déformées par les mouvements tectoniques, ce qui a créé des structures géologiques complexes.

L'avant-pays est divisé en deux zones principales : l'avant-pays allochtone et l'avant-pays autochtone.

II. 3.4.1. Les séries autochtones : à l'ouest et au centre du pays, on distingue :

Le para-autochtone du littoral oranais qui comporte les massifs d'Oran, d'Arzew et des Traras. Ces massifs schisteux du Silurien sont légèrement métamorphisés et sont constitués aussi de calcaires massifs du Lias, d'une série schisteuse du Dogger et de marnes schisteuses du Sénonien (Fenet, 1975). Ces formations ont été déposées à différentes époques géologiques et témoignent de l'évolution géologique complexe de cette région. Le para-autochtone du littoral oranais est une unité géologique importante de la région d'Oran, car elle constitue le substratum des plaines côtières et des montagnes environnantes. Cette unité a également subi une déformation importante au cours de l'histoire géologique de la région, ce qui a donné lieu à une structure complexe avec des plis, des failles et des chevauchements.

L'autochtone des massifs du Chellif, Djebel Zaccar et Djebel Doui : ils sont situés au Nord et au Sud de la plaine du Chellif. Cette unité est généralement formée par une série schisteuse paléozoïque avec des quartzites parfois épi-métamorphiques, une série gréseuse du Permo-Trias et des calcaires Dogger-Malm. Ces formations sont affectées d'un léger métamorphisme (Lepvrier, 1978).

L'autochtone Nord tellien de l'Algérois est une autre unité géologique importante du domaine externe. Cette unité est formée par une série lithologique principalement schisteuse (Néocomien) et marno-calcaire (Crétacé supérieur) et est représentée par l'Atlas de Bou-Maad et l'Atlas Blidéen.

Enfin, l'autochtone intra-tellien est une unité géologique qui est constituée de formations d'âge mésozoïque et parfois paléozoïque. Elle est représentée à l'Ouest par le massif autochtone de l'Ouarsenis, qui est composé de formations à faciès telliens avec des intercalations néritiques (Mattauer, 1958).

II. 3.4.2. Les séries para-autochtones : dans l'ouest et le centre du pays, on distingue :

Les hautes plaines oranaises et les hautes plaines algéroises, caractérisées généralement par une série stratigraphique plus épaisse.

Les hautes plaines oranaises sont caractérisées par une structure tabulaire et des formations du Crétacé et du Jurassique, qui sont généralement plus épaisses que celles des hautes plaines algéroises. Les plis dans cette région sont également très faibles, ce qui indique que les mouvements tectoniques étaient plutôt limités. En revanche, les affleurements dans le sud des hautes plaines algéroises sont similaires à ceux du Crétacé de l'Atlas saharien, mais les épaisseurs des formations sont légèrement plus importantes sur l'Atlas saharien. Cela peut être dû à des variations dans les mouvements tectoniques dans ces régions, ainsi qu'à d'autres facteurs géologiques.

En somme, les hautes plaines oranaises et les hautes plaines algéroises sont deux exemples de séries para-autochtones en Algérie, caractérisées par des formations sédimentaires épaisses et des mouvements tectoniques relativement faibles.

III. Cadre géographique, géologique et tectonique de l'Algérie Nord Occidentale

III.1. Cadre géographique

La région d'étude se situe dans la partie Nord-Ouest du pays (Fig.3). Administrativement, cette région s'étend sur plusieurs wilayas et communes, notamment Oran, Tlemcen, Naama, Mostaganem, Mascara, Saida, Sidi Bel Abbès, Tiaret, Tissemsilt, Relizane et Chéelif. Elle est globalement limitée :

- Au Nord, par la mer Méditerranée.
- À l'Est, elle est limitrophe des wilayas du centre de l'Algérie, telles que Tipaza et Ain Defla.
- Au Sud, par l'Atlas saharien, qui est une chaîne de montagnes de l'Afrique du Nord.
- Enfin, à l'Ouest, par les frontières avec le Maroc.

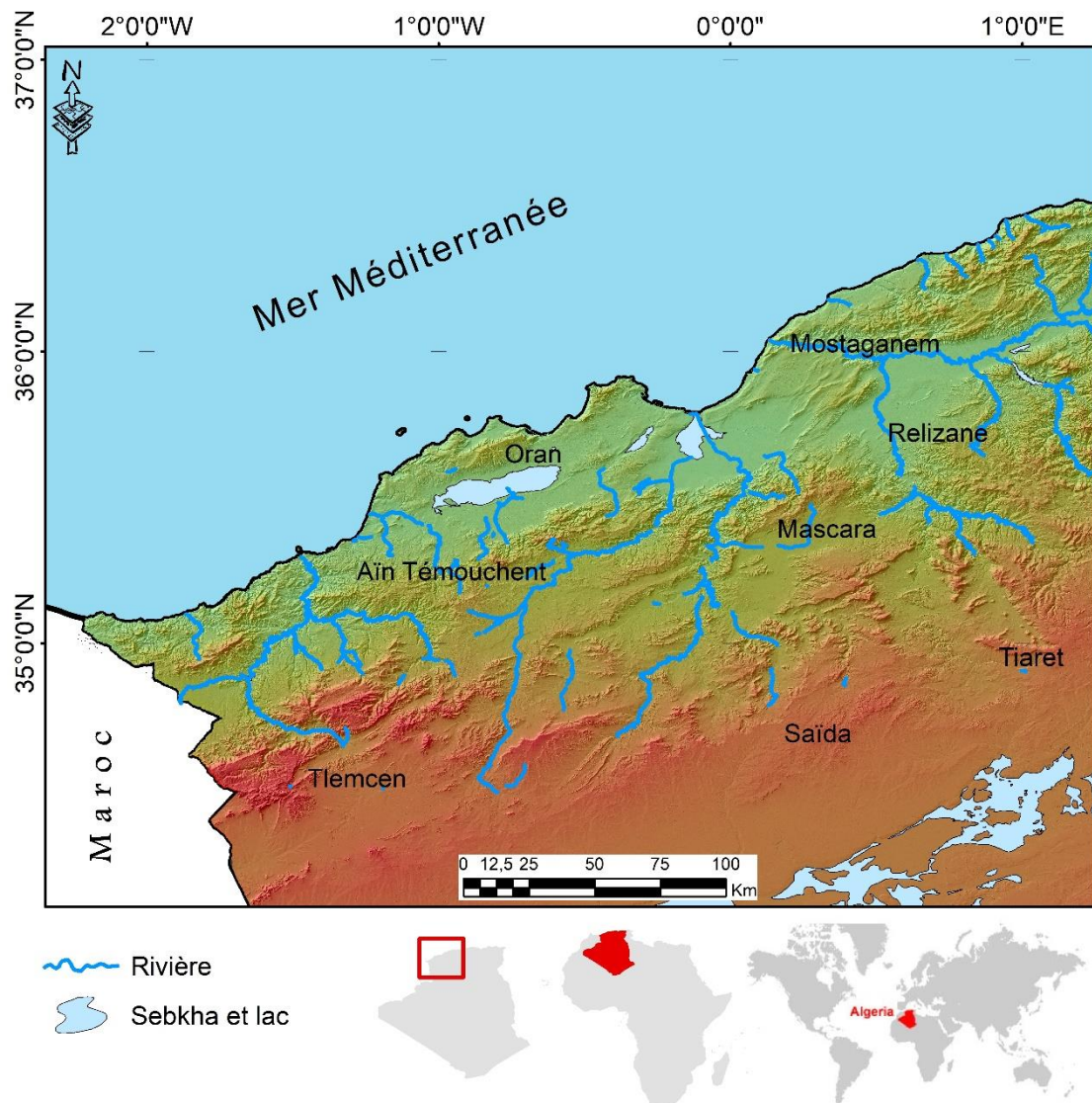


Fig. 3. Situation géographique de la région d'étude

III.2. Cadre géologique du Nord-Ouest algérien

La région d'étude fait partie du domaine tellien, qui correspond aux zones externes de l'Algérie septentrionale. Cette région présente une structure géologique très complexe, caractérisée par de grandes variations des séries et des formations d'âge et de nature différents (Fig. 4).

Plusieurs unités géologiques se superposent, allant du Paléozoïque à l'actuel. Elles ont été plissées, faillées et déformées au cours des temps géologiques. Parmi les formations du Paléozoïque, on retrouve des schistes, des grès et des calcaires. Les formations du Mésozoïque sont principalement représentées par des calcaires et des marnes. Le Cénozoïque de la région est principalement composé de formations sédimentaires et volcaniques. Cette complexité géologique est due à l'histoire tectonique mouvementée de la région, qui a subi plusieurs phases d'orogénèse et de métamorphisme au cours de son évolution géologique

Les systèmes hydrothermaux du Nord-Ouest algérien reposent sur ces différentes unités géologiques. Plusieurs entités géologiques caractérisent le Nord-Ouest algérien, dont le bassin de Tafna et les Monts de Tlemcen qui se prolongent vers l'Est pour former les Monts de Saida. Cet ensemble est appelé le domaine Tlemcenien. Au Nord, le littoral Oranais marque la limite septentrionale du bassin du Bas Chéelif, chacun ayant ses propres particularités géologiques.

Notre étude s'appuie sur les travaux majeurs de plusieurs chercheurs et auteurs ayant abordé la région Nord-Ouest de l'Algérie, y compris les bassins néogènes sublittoraux, les massifs côtiers et la région de Tlemcen. Ces travaux ont été menés selon différentes approches, notamment la stratigraphie, la sédimentologie, l'hydrogéologie et la tectonique. Parmi ces auteurs : [Clair \(1952\)](#), [Perrodon \(1957\)](#), [Pitaud \(1973\)](#), [Guardia \(1975\)](#), [Fenet \(1975\)](#), [Meghraoui \(1982\)](#), [Thomas \(1985\)](#), [Hassani M.I. \(1987\)](#) ainsi que [Ameur \(1999\)](#).

III.2.1. Le littoral Oranais et les massifs littoraux

Le littoral Oranais et les massifs littoraux désignent des régions géologiques spécifiques de la partie occidentale de l'Algérie. Le littoral Oranais fait référence à la bande côtière située dans la région d'Oran, tandis que les massifs littoraux se réfèrent aux chaînes de montagnes qui longent la côte de cette région. Ces massifs littoraux présentent des caractéristiques géologiques distinctes, notamment une géologie complexe avec des formations rocheuses variées, des structures plissées et faillées, ayant subi des processus d'érosion marine importants qui ont façonné le paysage côtier actuel.

La zone côtière de l'Algérie occidentale est la région la plus récente et la plus instable du Tell septentrional. Les structures géologiques qui la composent ont des propriétés et des âges différents, résultant de l'orogénèse alpine qui a transformé la structure de l'Atlas tellien en un empilement d'unités structurales charriées et imbriquées entre elles ([Fenet, 1975](#) ; [Guardia, 1975](#)). Cet empilement d'unités structurales a exposé des formations rocheuses anciennes, comme les schistes constituant le massif des Traras et les montagnes d'Arzew, également connues sous le nom de montagne des Lions (Djebel Khar), qui surplombent la source thermale et la plage d'Ain Franin et Kristel à l'Est de la ville d'Oran. Au Nord-Ouest d'Oran, ces formations géologiques forment le massif du Murdjadjo, dont la schistosité remonte au Paléozoïque et au Mésozoïque. Plus à l'Est, le plateau de Mostaganem est recouvert de formations d'âge quaternaire, telles que les croûtes calcaires, les limons rubéfiés et les dunes.

Les différents massifs côtiers du Nord-Ouest de l'Algérie sont composés de formations géologiques allant du Primaire jusqu'au Quaternaire. Les calcaires d'âge secondaire de l'Oranie

forment la partie méridionale du massif du Murdjadjo et se caractérisent souvent par des reliefs abrupts.

III.2.1.1. Lithostratigraphie des massifs littoraux

La lithostratigraphie de cette région peut être divisée en plusieurs unités en fonction de leur composition et de leur âge. Les formations géologiques de la série stratigraphique dans les massifs littoraux de l'Oranie débutent par les formations du substratum qui forment l'autochtone (Fenet, 1975) ou l'autochtone anté-nappe (Thomas, 1985). Les massifs du Murdjadjo et du Djebel Khar, qui ont une orientation SW-NE, sont composés de terrains d'âge secondaire (Trias, Jurassique et Crétacé) anté-nappes, qui reposent sur des terrains plus anciens du Primaire, affleurant dans le Djebel Khar et les massifs de Madagh (Ciszak, 1993).

2.1.1.1. Le Primaire : Les massifs des Andalouses et Madagh à l'Ouest ainsi que le Djebel Khar à l'Est d'Oran sont des zones où le Primaire affleure sous forme de schistes et de conglomérats carbonifères et permo-carbonifères. Cette région est principalement constituée de formations siliceuses et de schistes. Les formations les plus anciennes sont des schistes et des quartzites datant du Cambrien inférieur, suivis de grès et de schistes du Cambrien moyen. Les schistes et les calcaires du Cambrien supérieur sont également présents dans cette zone géologique.

2.1.1.2. Le Trias : Le Trias est présent à l'Ouest et au Sud du Djebel Santon, ainsi qu'à l'Est près du Djebel Khar, à Ain Franin. Il est principalement constitué de marnes et de gypses, avec des argiles associées. Dans ces régions, le Trias affleure généralement sous forme de diapir.

2.1.1.3. Le Jurassique : Il est présent dans plusieurs zones géologiques de la région, notamment au Sud-Ouest du Murdjadjo à Ain Keffri, à Santa Cruz, à Cap Falcon, à Djorf El-Alia et au Djebel Santon. Les formations carbonatées accompagnées de calcaires schisteux sont caractéristiques de cette période.

Le Lias est représenté par des calcaires bleus foncés en bancs épais puis minces, ainsi que des schistes jaunes ocres reposant sur des dolomies massives souvent fracturées, noires à bleues.

Le Dogger, une subdivision du Jurassique moyen, est représenté par des schistes gris argentés calcaireux, surmontant des schistes de l'ardoisière, fins et noirs.

Le Malm est caractérisé par des schistes rouge-orangé, parfois verdâtres, ainsi que des bancs de calcaire intercalés de niveaux argileux, avec de petits bancs de grès gris à roux.

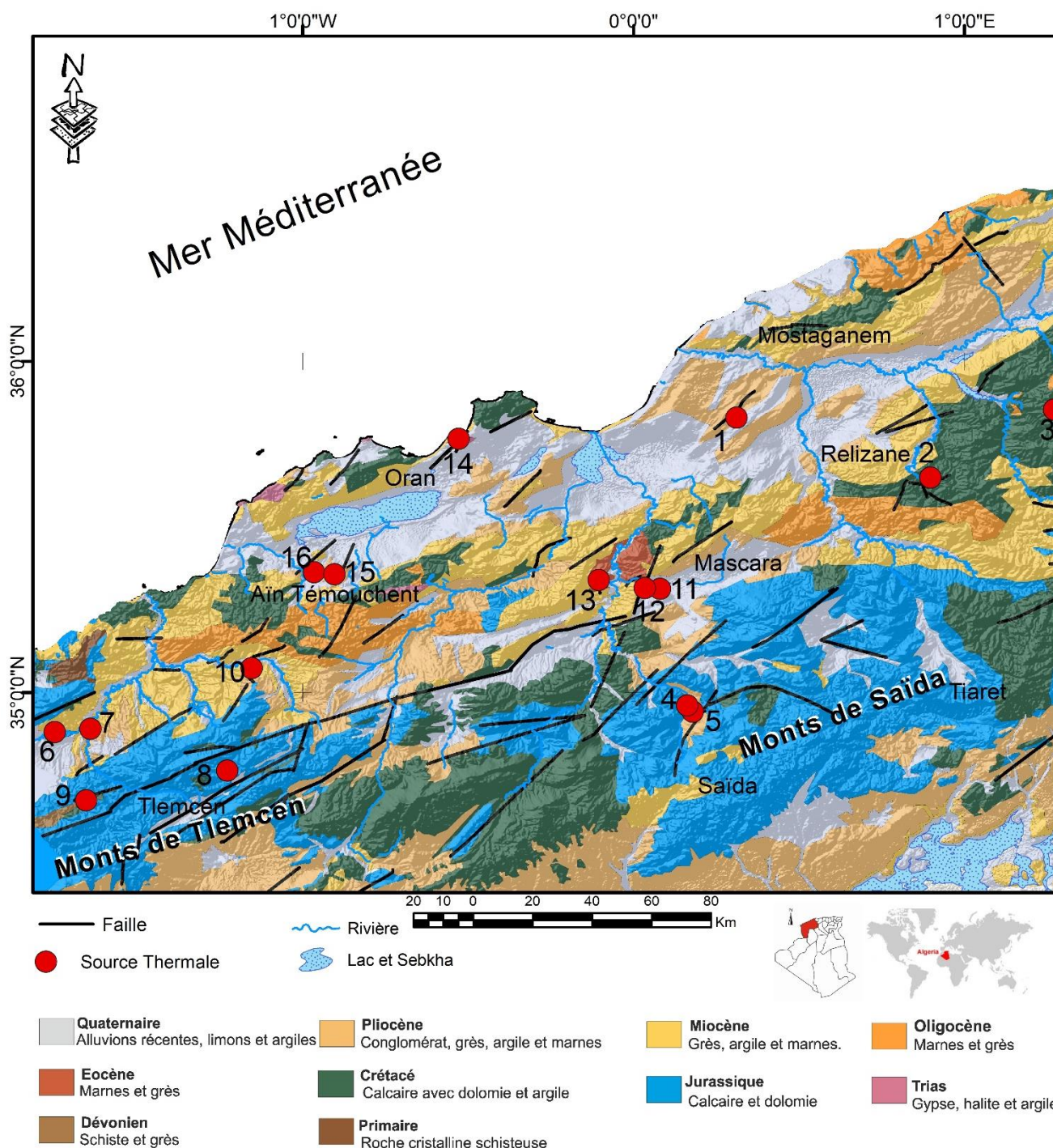


Fig. 4. Carte géologique du Nord-Ouest algérien avec localisation des sources thermales étudiées (d'après Cornet et al., 1952, légèrement modifié)

(1: Mkeberta; 2: Béni Yessaad; 3: Mentila; 4: Hammam Rabi; 5: Sidi Aissa; 6: Chiguer; 7: Boughrara; 8: Tahamamit; 9: Ain Hemmam; 10: Sidi Abdelly; 11: Bouhnifia Nekhla; 12: Bouhnifia N°3 Hamia; 13: El Hammat; 14: Ain Franin; 15: Hammam Bouhdjar; 16: Sidi Ayd)

2.1.1.4. Le Crétacé : La période du Crétacé est représentée dans la région par l'ossature du Murdjadjo, dont le faciès est principalement constitué de grès schisteux plissés, de couleur gris orangé à verdâtre. Parfois, des bancs de quartzites liés au Néocomien sont également présents. Dans certaines zones, ce faciès peut passer à des calcschistes avec des lentilles de calcaires (Ciszak, 1993).

III.2.2. Bassin du Bas-Chélif

Dans le Nord-Ouest de l'Algérie, le bassin néogène du Bas-Chélif s'étend sur environ 300km de longueur et 100km de largeur dans une direction ENE-WSW, parallèlement à la côte méditerranéenne et correspond au sillon médian (Delfaud et al., 1973). Le bassin est limité au Nord par les massifs littoraux Oranais, tels que Djebel Murdjadjo, le massif d'Arzew et les massifs de Dahra. Sa limite Sud est délimitée d'Ouest en Est par les Monts de Tessala et Béni Chougrane. Ce bassin intra-montagneux fonctionne en graben le long de grandes flexures bordières, qui ont été créées au cours de l'orogénèse alpine. Sa structure actuelle a été formée lors de la dernière phase de l'orogénèse alpine, telle que décrite par Perrodon, en 1957.

Le bassin du Bas-Chélif comprend un cycle miocène qui se compose de deux parties. La première partie est le Miocène inférieur qui est en discordance avec le substratum crétacé. Cette partie est caractérisée par la présence de conglomérats, de grès et de marnes bleues. La seconde partie est le Miocène supérieur qui est constitué de grès et de conglomérats qui passent vers le centre du bassin pour se transformer en marnes bleues d'âge Tortonien. Les diatomites et les gypses, datant du Messinien, recouvrent cette formation marneuse (Perrodon, 1957).

Les dépôts du cycle Pliocène dans le bassin du Bas-Chélif sont de deux types : marins et continentaux. Les dépôts marins sont représentés par des marnes bleues dans la partie inférieure et par des grès astiens dans la partie supérieure. Ces dépôts affleurent le long de toute la limite sud-orientale du massif de Dahra, ainsi que sur le plateau de Mostaganem et de Gdyl. En revanche, les dépôts continentaux du Pliocène sont constitués de sables, de grès et d'argiles rouges, et affleurent sur toute la partie occidentale du bassin du Bas-Chélif.

III.2.3. Le bassin de la Tafna et Monts de Tlemcen

Tout comme le bassin du Bas-Chélif, le bassin de la Tafna est situé dans la zone tellienne, comme l'a souligné Fenet en 1975. Il s'agit d'un bassin intra-montagneux situé à l'extrémité Ouest du pays (Fig. 5).

Le bassin de la Tafna est la limite occidentale des bassins littoraux néogènes de l'Algérie (Neurdin, 1992). Il appartient au domaine externe de la chaîne alpine et présente une structure complexe avec

une direction générale WSW-ENE. Les Monts de Tessala constituent sa limite orientale, l'autochtone du massif des Traras, sa limite occidentale, et les Monts de Tlemcen marquent sa limite sud où il prend sa source.

Le bassin de la Tafna est constitué d'un ensemble d'unités allochtones et d'un Miocène autochtone. Sa limite Nord-Ouest, représentée par le massif Beni-Snassen de la chaîne des Monts des Traras, est constituée d'un ensemble de massifs autochtones comprenant principalement des terrains primaires et secondaires, avec une dominance de calcaires et de marno-calcaires affectés par une tectonique en écaillage (Ameur, 1999).



Fig. 5. Localisation et limite du Bassin de la Tafna

III.2.3.1. Lithostratigraphie du bassin de la Tafna et Monts de Tlemcen

En plus de sa géologie complexe, le bassin de la Tafna est bien affecté par la tectonique, avec un système de failles et de mouvements de grande ampleur ayant façonné sa structure géologique. L'évolution lithostratigraphique de ce bassin a débuté au cours du Primaire et s'est poursuivie

jusqu'au Plio-Quaternaire, englobant donc une période très longue de l'histoire géologique de cette région.

2.3.1.1. Le Paléozoïque : Dans la région de la Tafna, ce terrain est caractérisé par des formations de schistes quartzitiques très plissées à Rhar-Roubane et au djebel Fillaoucène, ainsi que par des granites dans la partie Nord-Est de la ville de Nedroma.

2.3.1.2. Le Mésozoïque : Il occupe une grande partie de cette région et forme principalement la couverture géologique des Monts de Tlemcen.

2.3.1.2.1. Le Trias : Le Trias est également présent dans la région, avec des affleurements au secteur d'Aïn Tellout. Il montre une tectonique locale caractérisée par des structures diapiriques et est composé de faciès argilo-salifères ainsi que de marnes bariolées fortement teintées.

2.3.1.2.2. Le Jurassique : Il est caractérisé par diverses formations géologiques dans la région, notamment les argiles de Saida qui sont des dépôts argilo-marneux, parfois schisteux, pouvant atteindre une épaisseur de 500 m et composés principalement de grès blancs à bruns durs avec des intercalations de bancs marneux multicolores. Les Monts de Tlemcen sont principalement marqués par les calcaires et dolomies, comprenant des bancs calcaires intercalés de calcaires marneux écailleux du Kimméridgien avec des fossiles. Les dolomies de Tlemcen, datées du Kimméridgien moyen-supérieur, sont de couleur grise et abritent de nombreuses grottes remplies de calcite.

2.3.1.2.3. Le Crétacé : Le Crétacé est présent dans le bassin de la Tafna sous forme de formations sédimentaires diverses, dont les plus importantes sont les formations de l'Aptien-Albien inférieur et supérieur. On y trouve des marnes, des calcaires, des grès et des conglomérats. Les calcaires sont souvent associés à des niveaux marneux et sont riches en fossiles de faune et de flore marine. Les conglomérats et les grès sont d'origine détritique et peuvent atteindre plusieurs centaines de mètres d'épaisseur. Le Crétacé de la Tafna est fortement structuré par des failles et des plis, témoins de l'orogénèse alpine qui a affecté la région à la fin du Crétacé et au début du Tertiaire. Il est aussi représenté par des argiles du Crétacé inférieur et parfois argilo-gréseuse, affleurant à Hassi Zerga dans le bassin de Sebdu.

2.3.1.3. Le Cénozoïque

2.3.1.3.1 Le Miocène : Le Miocène des bassins du Nord-Ouest de l'Algérie forme un cycle sédimentaire complet, qui se divise en Miocène inférieur et supérieur (Perrodon, 1957).

La partie inférieure du Miocène se situe de part et d'autre de la Tafna, entre l'oued Zitoun et le djebel Fillaoucène, et se compose d'éléments calcaires dolomitiques avec un ciment calcaire gréseux résistant, atteignant une épaisseur de 20m. Le Miocène moyen, également appelé "Serravallien", recouvre en discordance le Miocène inférieur, et se caractérise par une épaisse couche d'argiles marneuses grises ou bleutées. Dans le bassin de la Tafna, on observe un niveau discontinu de roches détritiques peu consolidées avec un ciment argilo-gréseux, bien visible à environ 4 km à l'Est de Hammam Boughrara. Le Miocène supérieur se compose de marnes noires ou bleues, de sables, de grès durs, de calcaires et de gypses, et affleure dans la partie septentrionale de ce bassin (Perrodon, 1957).

2.3.1.3.2. Le Plio-Quaternaire

Dans cette région, le Plio-Quaternaire correspond à une période géologique qui se caractérise par la présence de formations marines et continentales. Les formations marines sont essentiellement composées de marnes et de marnes argileuses qui affleurent sur la rive droite de l'Oued Tafna. Les dépôts continentaux, quant à eux, sont de nature variable et se composent de dépôts conglomératiques dominants ainsi que de travertins, de marnes, de limons et d'alluvions formés d'éléments hétérométriques. La série complexe est caractérisée par des dépôts discontinus.

Le Quaternaire est représenté par des alluvions et des dépôts fluviatiles, notamment des sables et des graviers, ainsi que des dépôts éoliens et des dunes de sable. Les dépôts quaternaires sont souvent affectés par une forte érosion et une dynamique fluviale importante.

III.2.4. Domaine Tlemcenien, Monts de Saida

Plus au sud de la région étudiée, apparaît une unité géologique secondaire de couverture Jurassique, ce sont les Monts de Tlemcen et les Monts de Saida, qui forment le domaine Tlemcenien (Elmi, 1976 ; Aneur, 1988). Ce dernier représente la limite septentrionale du domaine atlasique. Cette zone est caractérisée par une couverture jurassique, principalement constituée de roches carbonatées, qui sont responsables de la tectonique cassante de cette région. Les Monts de Saida sont bordés au Nord par le massif des Béni-Chougrane et au Sud par la grande dépression du Chott Chergui. Cette zone est également connue pour ses terrains karstiques, qui sont particulièrement présents dans la partie méridionale (Pitaud, 1973).

III.2.4.1. Lithostratigraphie des Monts de Saida

D'après les études lithostratigraphiques de Clair (1952) et Pitaud, (1973), on distingue :

2.4.1.1. Le Primaire : Dans la région de Hammam Rabbi et Tifrit à l'Est, l'affleurement de ce socle est composé de quartzites et de schistes ainsi que de coulées de laves basaltiques

2.4.1.2. Le Mésozoïque : Les dépôts d'âge secondaire se trouvent dans toute la région et recouvrent les roches paléozoïques. Leurs formations sont largement représentées par les roches sédimentaires et volcaniques.

Les roches sédimentaires du Mésozoïque sont représentées par les formations suivantes (Pitaud, 1973) :

- Formation du Trias supérieur : constituée de calcaires argileux, de marnes et de gypses.
- Formation du Jurassique inférieur : composée de marnes, de calcaires, de dolomies et de grès.

Les roches volcaniques sont représentées par :

- Les basaltes : présents dans la région de Tifrit et Hammam Rabbi.
- Les phonolites : affleurant à l'Est de Tifrit.

Ces roches témoignent d'une activité volcanique importante au cours de la période mésozoïque dans cette région.

2.4.1.3. Le Jurassique : le Jurassique de cette région se compose d'un groupe carbonaté et dolomitique du Jurassique inférieur, d'un groupe détritique argilo-gréseux, daté du Callovo-Oxfordien, ainsi que d'un groupe dolomitique du Kimméridgien.

- **Lias :** Les formations du Lias, appelées les dolomies de Tifrit, constituent l'aquifère le plus important dans la région comme la formation carbonatée d'Ain Dez (Aalénien-Bajocien) et de Zerzour (Bathonien)

- **Dogger et Malm :** Le Jurassique moyen et supérieur affleure dans la partie Est du bassin versant de Saida, avec le Callovo-Oxfordien formé par les "argiles de Saida" et quelques bancs gréseux. Le Kimméridgien est représenté par une série de dolomies appelée dolomie de «Sidi Boubekeur», qui affleure sur les Monts de Daïa et est l'équivalente de la dolomie de Tlemcen (Bencherki, 2008).

2.4.1.4. Le Crétacé : Les dépôts du Crétacé sont représentés par des calcaires cristallins à alternance de marnes et qui ont un développement limité.

2.4.1.5. Le Néogène et le Quaternaire : Les dépôts de ces séries sont caractérisés par la présence d'argiles, de croûtes calcaires et de conglomérats dans la vallée de l'Oued Saida et constitués d'éléments grossiers ou limoneux.

IV. Conclusion

L'Algérie est située dans une zone géodynamique complexe, qui a subi plusieurs stades de déformations et de dépôts depuis le Précambrien jusqu'à nos jours. La partie sud du pays a été influencée par deux orogènes majeurs, le calédonien et l'hercynien, tandis que la partie Nord est marquée par l'empreinte de l'orogénèse alpine.

Dans le Nord-Ouest de l'Algérie, on retrouve des formations géologiques variées, allant du Précambrien au Quaternaire. Les monts de Tlemcen et les monts de Saida sont les principales unités géologiques de cette région. Les roches paléozoïques y sont représentées par des quartzites et des schistes, tandis que les roches mésozoïques comprennent des formations sédimentaires et volcaniques. Le Jurassique est caractérisé par un groupe carbonaté et dolomitique, ainsi que par un groupe détritique argilo-gréseux. Les dépôts du Crétacé sont représentés par des calcaires cristallins avec des alternances de marnes.

Enfin, les dépôts du Néogène et du Quaternaire comprennent des argiles, des croûtes calcaires et des conglomérats. Ces formations géologiques dans la région d'étude ont une importance économique, car elles renferment des ressources naturelles telles que des gisements de minerai et des sources thermales, notamment à Hammam Bouhadjar, où les eaux chaudes sulfureuses sont utilisées pour des traitements médicaux et pour la détente.

En somme, la géologie du Nord-Ouest de l'Algérie est le résultat d'une longue évolution géodynamique, qui a été marquée par plusieurs phases de déformation et de dépôt de roches. Cette région est caractérisée par des formations géologiques riches et variées, qui témoignent de son histoire complexe. L'étude de la géologie de cette région permet de mieux comprendre les processus qui ont façonné le paysage et l'environnement naturel de cette partie de l'Algérie.

Chapitre II

*Les systèmes hydrothermaux du Nord-Ouest algérien,
cadre morpho-structural et hydrogéologique*

I. Introduction

Le Nord-Ouest algérien est une région géologiquement complexe qui a subi de multiples événements tectoniques au cours de son histoire géologique. Ces événements ont contribué à la formation de systèmes hydrothermaux.

L'étude géologique de la région a permis de mettre en évidence les formations géologiques qui constituent les principaux réservoirs de ces systèmes hydrothermaux. Ces formations se caractérisent par différentes structures tectoniques telles que des failles, des fractures, des plis, des linéaments et des zones de cisaillement qui ont favorisé la circulation des fluides souterrains. L'histoire géologique de la région est étroitement liée à ces principales structures tectoniques. La présence de sources d'eau chaude émergentes à la surface est une caractéristique marquante de ces systèmes. L'étude approfondie de ces structures et de leur relation avec les sources thermales permettra une meilleure compréhension de leur origine et de leur répartition dans la région.

Dans ce chapitre, nous allons examiner de près ces systèmes hydrothermaux, en les situant dans leur cadre morpho-structural et hydrogéologique. Au vu de la répartition des sources thermales dans cette région, le contexte géologique local et le contexte structural, et leur relation avec l'origine de ces sources ont été examinés.

Pour cela, différentes méthodes et outils d'investigation, tels que l'analyse structurale, la tectonique, la sismicité, l'imagerie satellitaire, les modèles numériques de terrain (MNT), ont été utilisés, afin de déterminer les éléments structuraux qui se manifestent dans le Nord-Ouest algérien et leurs relations avec les sources thermales.

L'aspect hydrogéologique local des eaux thermales est également étudié, afin de mieux comprendre leur comportement et leur circulation dans les terrains affleurants. Au final, ce chapitre permettra de mieux appréhender la structure générale du Nord-Ouest algérien et l'importance des systèmes hydrothermaux dans le contexte géologique, hydrogéologique et géothermique de la région.

II. Inventaire des sources thermales du Nord-Ouest algérien

Dans le Nord-Ouest algérien, les sources thermales représentent une ressource naturelle précieuse, réparties sur plusieurs sites. Pour notre étude, 16 sources thermales ont été considérées. Chaque site présente des caractéristiques spécifiques en termes d'émergence, de conditions géologiques, de composition chimique et de température des sources. Ces paramètres seront étudiés en détail ultérieurement.

En se basant sur les données géologiques, hydrogéologiques et géographiques de la région d'étude, les sources thermales ont été regroupées en quatre domaines, pour l'étude des conditions de leurs émergences ainsi que de leurs caractéristiques hydrochimiques. Ces domaines comprennent les sources du Bas-Chélif, du bassin de la Tafna, du Littoral et du domaine Tlemcénien (Tableau 1). A chaque groupe, une abréviation a été affectée, ainsi qu'un code pour chaque échantillon. Par exemple : l'abréviation du bassin du Bas-Chélif est "BC, avec : "S2" le code attribué à la source thermale de Béni Yessaad.

Tableau. 1. Listing des sources thermales étudiées

Code de la source	Nom de la source	Wilaya	Domaine	X (DD)	Y (DD)	E (m)
S1	Mkeberta	Mostaganem	LI	0,21	35,75	147
S2	Béni Yessaad	Relizane	BC	0,89	35,64	502
S3	Mentila	Relizane	BC	1.33	35,85	421
S4	Hamam Rabi	Saida	DMT	0.17	34.94	699
S5	Sid Aissa	Saida	DMT	0.16	34.96	638
S6	Chiguer	Tlemcen	BT	-1,74	34.38	355
S7	Bouhrara	Tlemcen	BT	-1,64	34.89	275
S8	Tahamamit	Tlemcen	BT	-1.22	34.76	882
S9	Ain Hammam	Tlemcen	BT	-1.65	34.67	809
S10	Sidi Abdely	Tlemcen	BT	-1.15	35.07	493
S11	Bouhnifia- Nekhla	Mascara	BC	0.05	35.31	229
S12	Bouhnifia El Hamia	Mascara	BC	0.03	35.29	253
S13	El-Hamat	Mascara	BC	-0.1	35.34	219
S14	Ain Franin	Oran	LI	-0.52	35,76	26
S15	Hamam Bouhdjar	Ain Temouchent	LI	-0.96	35,36	152
S16	Sidi Ayd	Ain Temouchent	LI	-0.95	35,35	194

LI= Littoral, BC= Bassin du Chelif, DMT= Domaine Tlemcenien, BT= Bassin de la Tafna, E = Elévation, X = Longitude, Y = Latitude et DD= Degrée Décimale

III. Relation systèmes hydrothermaux, tectonique et éléments structuraux

III.1. Les éléments structuraux du Nord-Ouest-algérien

L'Algérie septentrionale, particulièrement le Tell, est une région marquée par une forte activité tectonique. Cette région se situe à la jonction entre deux grandes plaques continentales, l'africaine et l'eurasienne, qui se déplacent l'une par rapport à l'autre. Les mouvements tectoniques associés à cette convergence sont responsables de l'activité sismique régulière que connaît la région.

Dans cette section, nous allons étudier les principaux éléments structuraux en relation avec les sources thermales de la région occidentale du Nord-Ouest algérien, en mettant en évidence leur morpho-structure et leur tectonique.

Le Nord de l'Algérie est soumis à de nombreux accidents tectoniques, principalement de type cassant, qui décrivent les caractéristiques essentielles de sa structure actuelle. La région du Nord-Ouest algérien est particulièrement affectée par ces manifestations tectoniques, avec de grandes fractures orientées généralement dans la direction tellienne (WSW-ENE).

La présence de fractures et d'accidents tectoniques est un élément important dans le drainage des sources thermales de la région étudiée. En effet, selon Verdeil (1981) et Fekraoui (2007), les émergences des sources thermales sont souvent directement liées aux accidents tectoniques dans le Nord-Ouest algérien, tels que les failles, les glissements, les linéaments et la sismicité, notamment les accidents de grande ampleur qui marquent la limite des plaques Afrique-Europe. La carte tectonique de l'Algérie occidentale (Fig. 6) montre un grand nombre de failles et d'accidents géologiques ; les sources thermales de la région sont souvent situées à proximité de ces zones accidentées.

En 1971, Serge Elmi a noté que la partie occidentale de l'Algérie est affectée par plusieurs décrochements majeurs (Fig. 7) :

Il y a d'abord la Transversale de la Tafna, qui suit en grande partie la ligne de crête de la partie Ouest des Monts de Tlemcen.

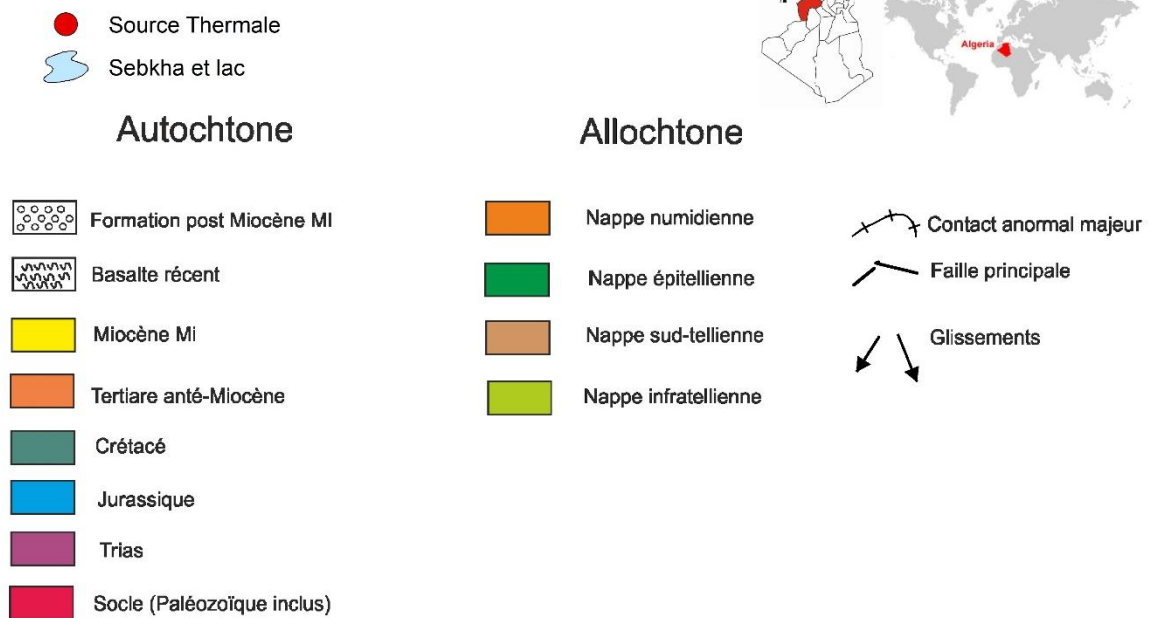
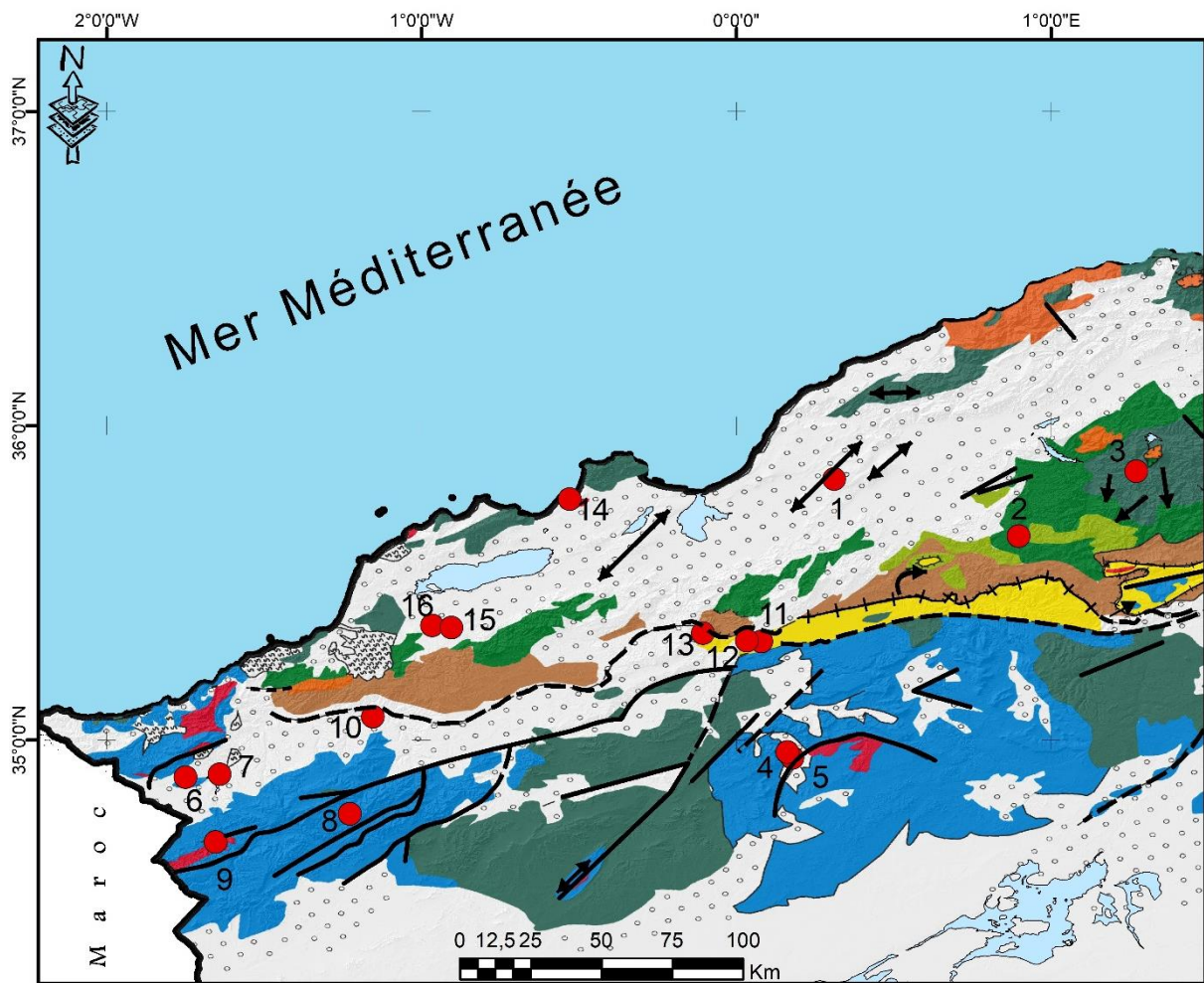


Fig. 6. Esquisse tectonique de la région d'étude (d'après Kieken, 1962, modifié)

(1: Mkeberta; 2: Béni Yessaad; 3: Mentila; 4: Hammam Rabi; 5: Sidi Aïssa; 6: Chiguer; 7: Boughrara; 8: Tahamamit; 9: Ain Hemmam; 10: Sidi Abdelly; 11: Bouhnifia Nekhla; 12: Bouhnifia N°3 Hamia; 13: El Hammat; 14: Ain Franin; 15: Hammam Bouhdjar; 16: Sidi Aïd)

La transversale d'Ain Tellout met en évidence les principaux décrochements des Monts de Tlemcen, d'âge jurassique et crétacé, et marque leur limite avec les monts de Daïa. Ces phénomènes résultent d'un serrage entre la masse rigide des Hautes Plaines Oraïses (au Sud) et le horst à matériaux paléozoïques de Ghar Roubane (au Nord-Ouest).

Il y a également la transversale d'Aïn Sefra-Saida, qui marque la limite entre les monts de Saida et les monts de Daïa, en passant directement par la zone d'émergence de la source thermique de Hammam Rabi. De plus, la transversale d'El Bayadh-Tiaret, située à l'Est des monts de Saida, délimite la frontière orientale du domaine Tlemcenien.

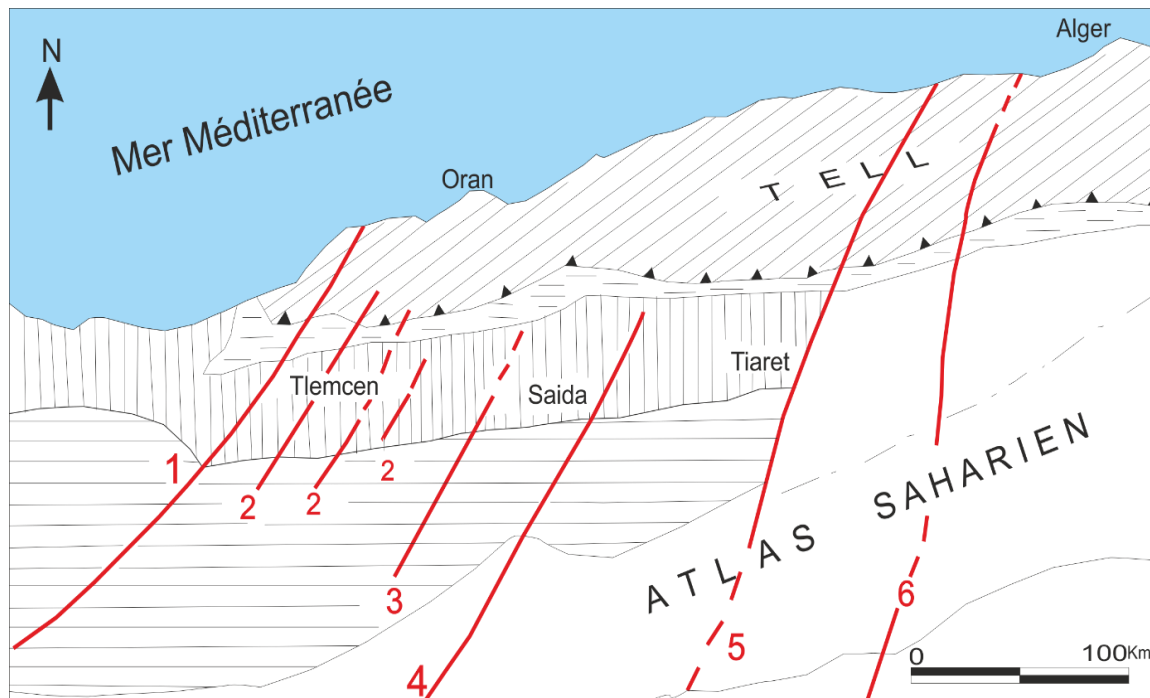


Fig. 7. Principales caractéristiques de la structure géologique de l'Algérie occidentale (Elmi, 1971). (1) Transversale de la Tafna, (2) principaux décrochements des Monts de Tlemcen, (3) Transversale d'Ain Tellout, (4) Transversale d'Aïn Sefra-Saida (5) Transversale d'El Bayadh- Tiaret, (6) Transversale de Teniet El Had.

III.1.1. Relation Source thermique-linéaments géographiques

L'extraction des linéaments géographiques par l'imagerie satellitaire est une méthode de cartographie qui permet de détecter les structures linéaires présentes à la surface de la terre en utilisant des images satellitaires (Jellouli et al., 2021). Cette technique implique l'analyse des variations de tonalité, de texture ou de forme sur les images satellitaires pour identifier les linéaments géographiques tels que les failles, les fractures, les plis, les dômes, les synclinaux, les anticlinaux, etc (Mazlan et al., 2013). Ces linéaments peuvent fournir des informations importantes sur la tectonique et la géologie d'une région donnée, ce qui peut être utile dans

divers domaines tels que l'exploration minière, l'hydrogéologie, la géothermie, la cartographie géologique etc (Bouaicha, F., 2018)

La combinaison des Systèmes d'Information Géographique (SIG) et des données d'imagerie satellitaire est devenue très importante et courante dans le domaine de la géologie structurale, notamment pour la détermination des fracturations et des linéaments géographiques. Afin d'établir la carte de fracturation et de déterminer les principaux linéaments de la région d'étude, nous avons utilisé des données satellitaires pour cartographier les linéaments structuraux du Nord-Ouest algérien. Cette approche nous a permis de mettre en évidence la relation entre les eaux thermales de la région et les fractures. Les linéaments sont le résultat des déformations structurelles et peuvent se présenter sous différentes formes géomorphologiques telles que les limites des reliefs, les lignes de crêtes, les failles et les fractures ainsi que les limites des affleurements géologiques. Les SIG permettent une analyse plus précise et une meilleure visualisation des résultats.

En utilisant les logiciels Geomatica version 2016 et ArcMap version 10.5, nous avons extrait les linéaments de la région d'étude à partir d'un modèle numérique de terrain. La carte des principaux linéaments obtenue (Fig. 8) montre l'importance des activités tectoniques et de l'histoire structurale et qui ont affecté l'ensemble du territoire algérien, en particulier la région Ouest du pays. La figure 9 illustre bien la relation entre les zones d'émergence des sources thermales et les linéaments. En effet, la majorité des sources thermales étudiées apparaissent aux endroits où les linéaments se croisent, d'où l'importance du rôle joué par ces linéaments structuraux dans l'apparition des sources thermales à la surface. Les linéaments sont parfois des signes de fractures géologiques sous forte pression. Les sources chaudes émergent souvent à proximité des zones où la densité des linéaments est forte (Fig. 10). Enfin, l'utilisation de données d'imagerie satellitaire et de systèmes d'information géographique pour cartographier les linéaments structuraux est essentielle pour étudier la relation entre les eaux thermales et les fractures géologiques.

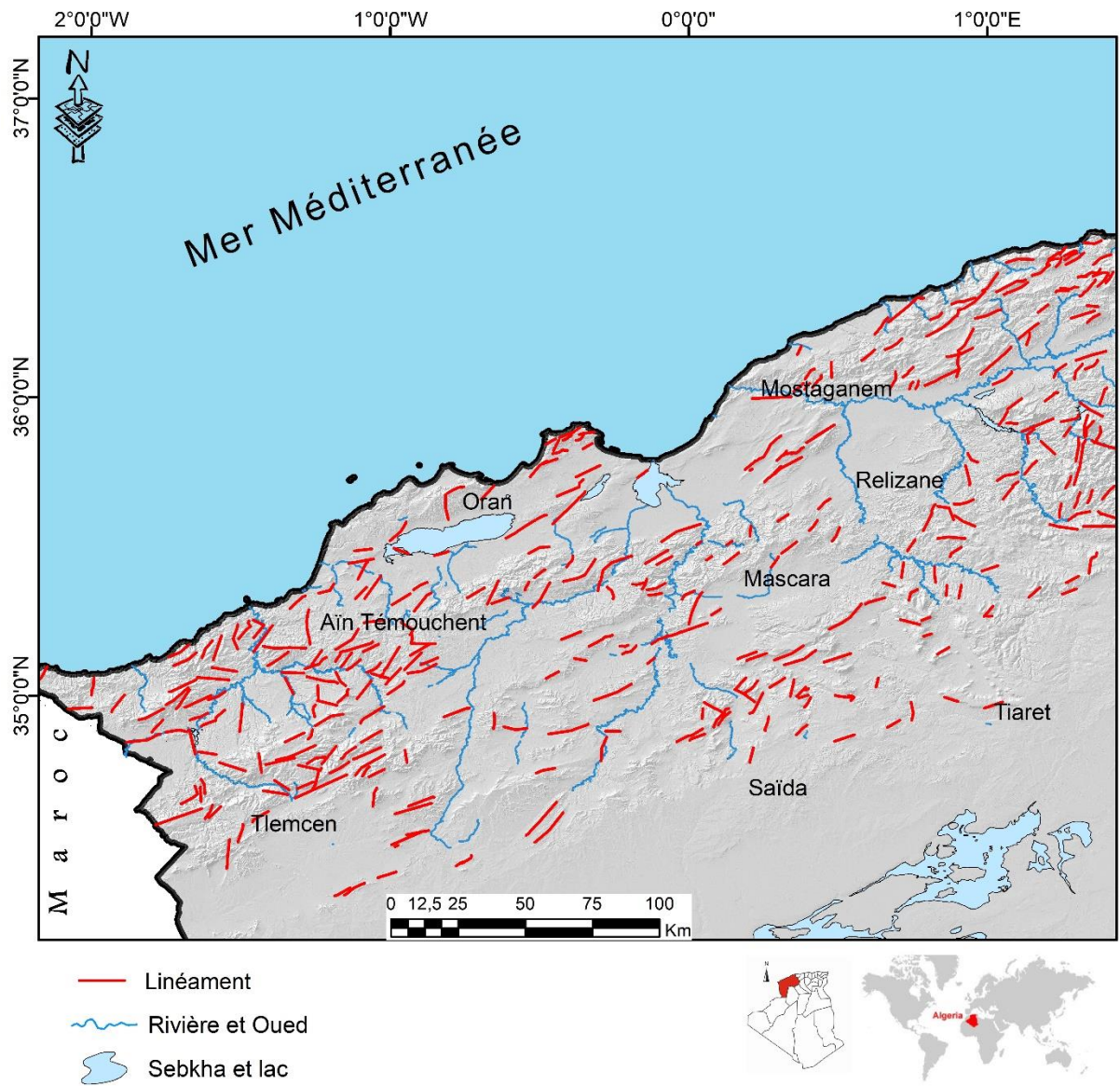


Fig. 8. Cartographie des principaux linéaments du Nord-Ouest algérien

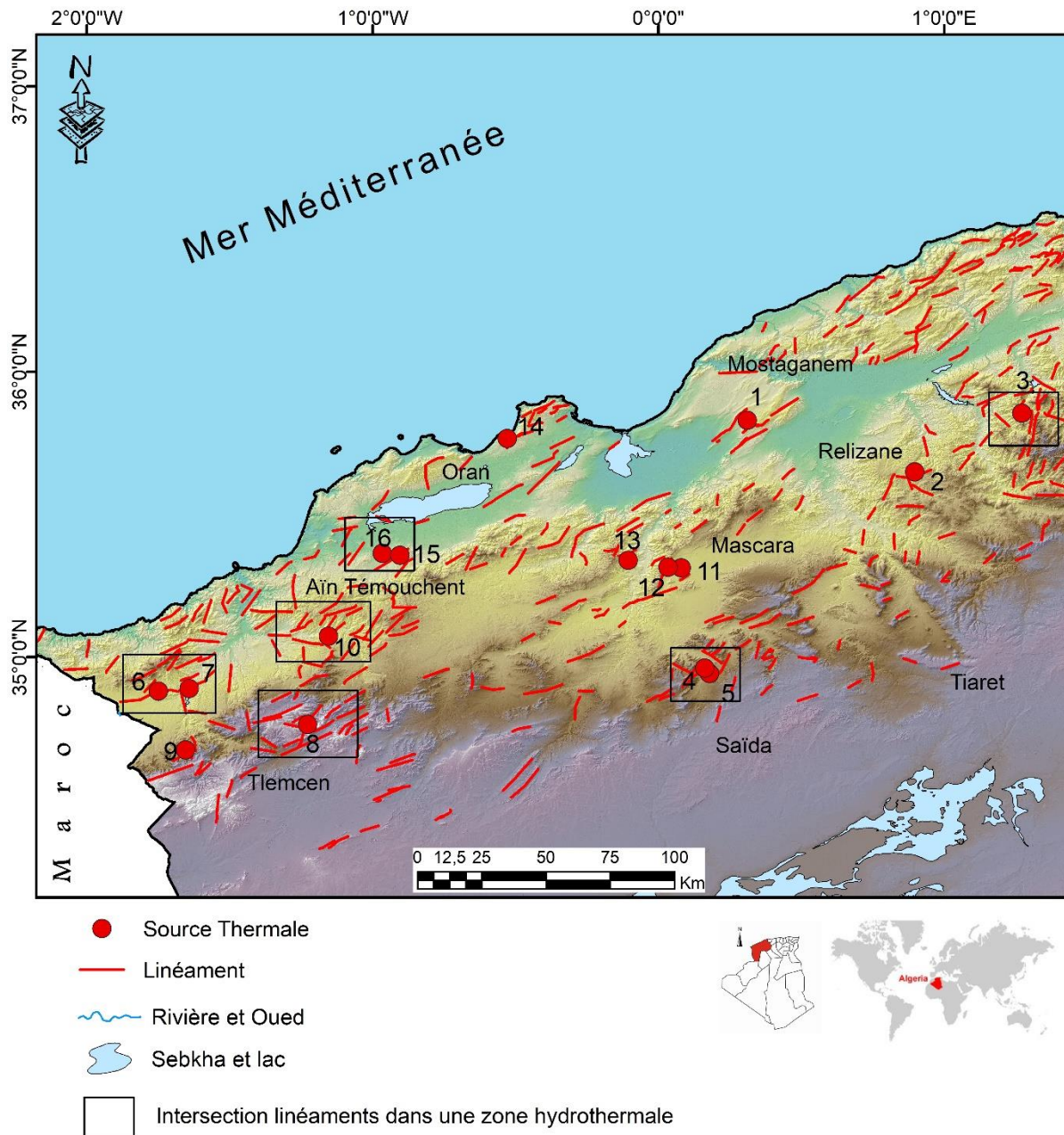


Fig. 9. Relation linéaments-zone des sources thermales

(1: Mkeberta; 2: Béni Yessaad; 3: Mentila; 4: Hammam Rabi; 5: Sidi Aïssa; 6: Chiguer; 7: Boughrara; 8: Tahamamit; 9: Aïn Hemmam; 10: Sidi Abdelly; 11: Bouhnifia Nekhla; 12: Bouhnifia N°3 Hamia; 13: El Hammat; 14: Aïn Franin; 15: Hammam Bouhdjar; 16: Sidi Aïd)

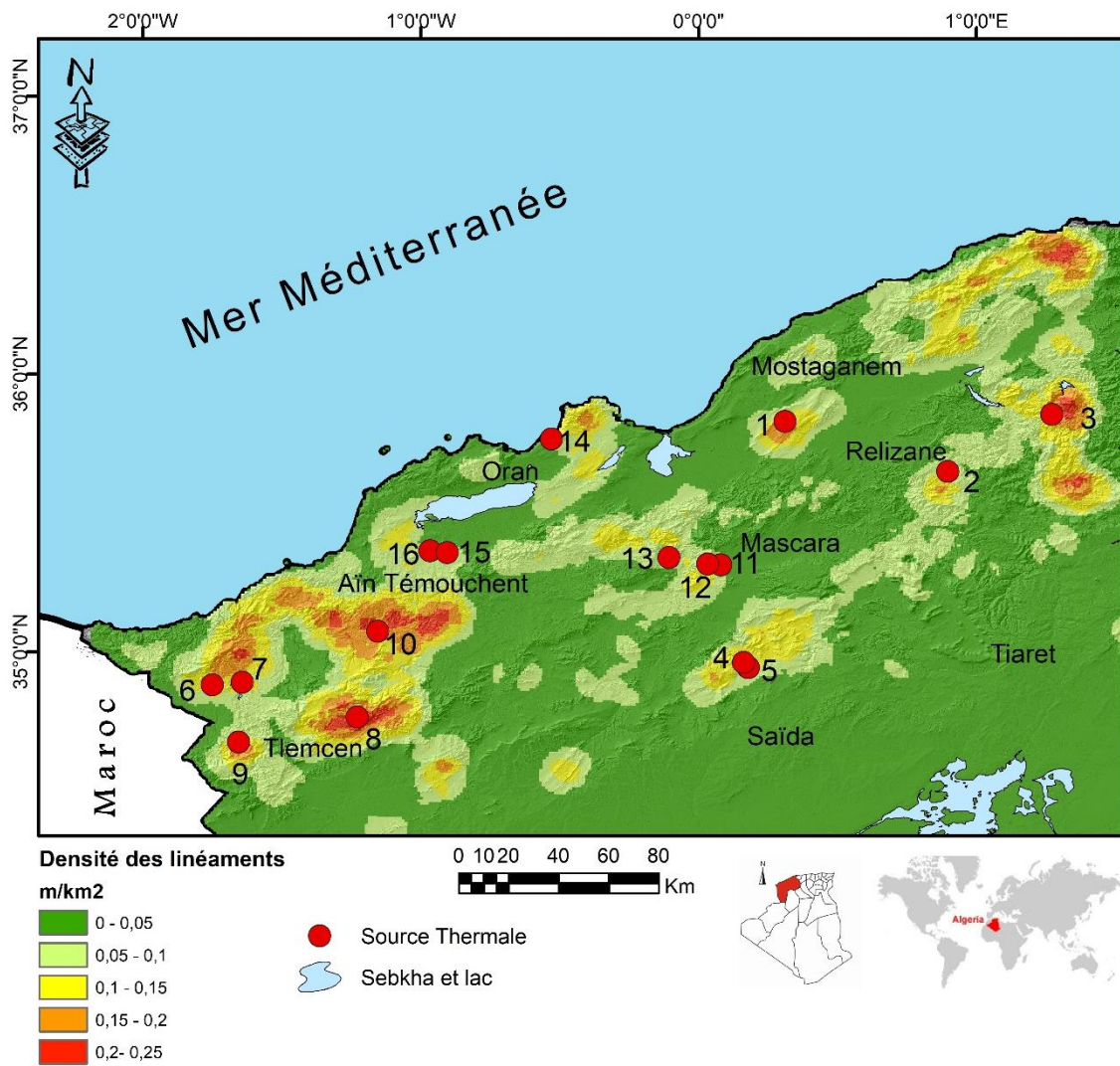


Fig. 10. Relation densité linéamentaire-sources thermales

(1: Mkeberta; 2: Béni Yessaad; 3: Mentila; 4: Hammam Rabi; 5: Sidi Aïssa; 6: Chiguer; 7: Boughrara; 8: Tahamamit; 9: Ain Hemmam; 10: Sidi Abdelly; 11: Bouhnifia Nekhla; 12: Bouhnifia N°3 Hamia; 13: El Hammat; 14: Ain Franin; 15: Hammam Bouhdjar; 16: Sidi Aïd)

III.1.2. Relation source thermale-faille

Les failles sont des structures géologiques importantes dans la tectonique de l'Algérie occidentale, en particulier pendant les périodes Crétacé, Jurassique et Mio-Pliocène ; elles constituent presque les limites entre ces formations. Selon différents auteurs et leurs études dans ce contexte, les systèmes hydrothermaux du Nord-Ouest algérien se manifestent à la surface à travers de nombreux accidents tectoniques qui sont généralement de profondes fractures affectant les réservoirs hydrothermaux jusqu'à leurs émergences à la surface (Verdeil, 1982 ; Fekraoui, 2007). Ces études ont montré qu'il existe une relation étroite entre la tectonique, la géologie cassante polyphasée, principalement des failles, et l'hydrothermalisme. La figure 11 illustre clairement la corrélation entre les sources thermales et les failles, en mettant en évidence la concentration de ces dernières dans les zones de jonction et d'interception des

failles, ce qui souligne l'importance de ces dernières dans la formation et la localisation des systèmes hydrothermaux.

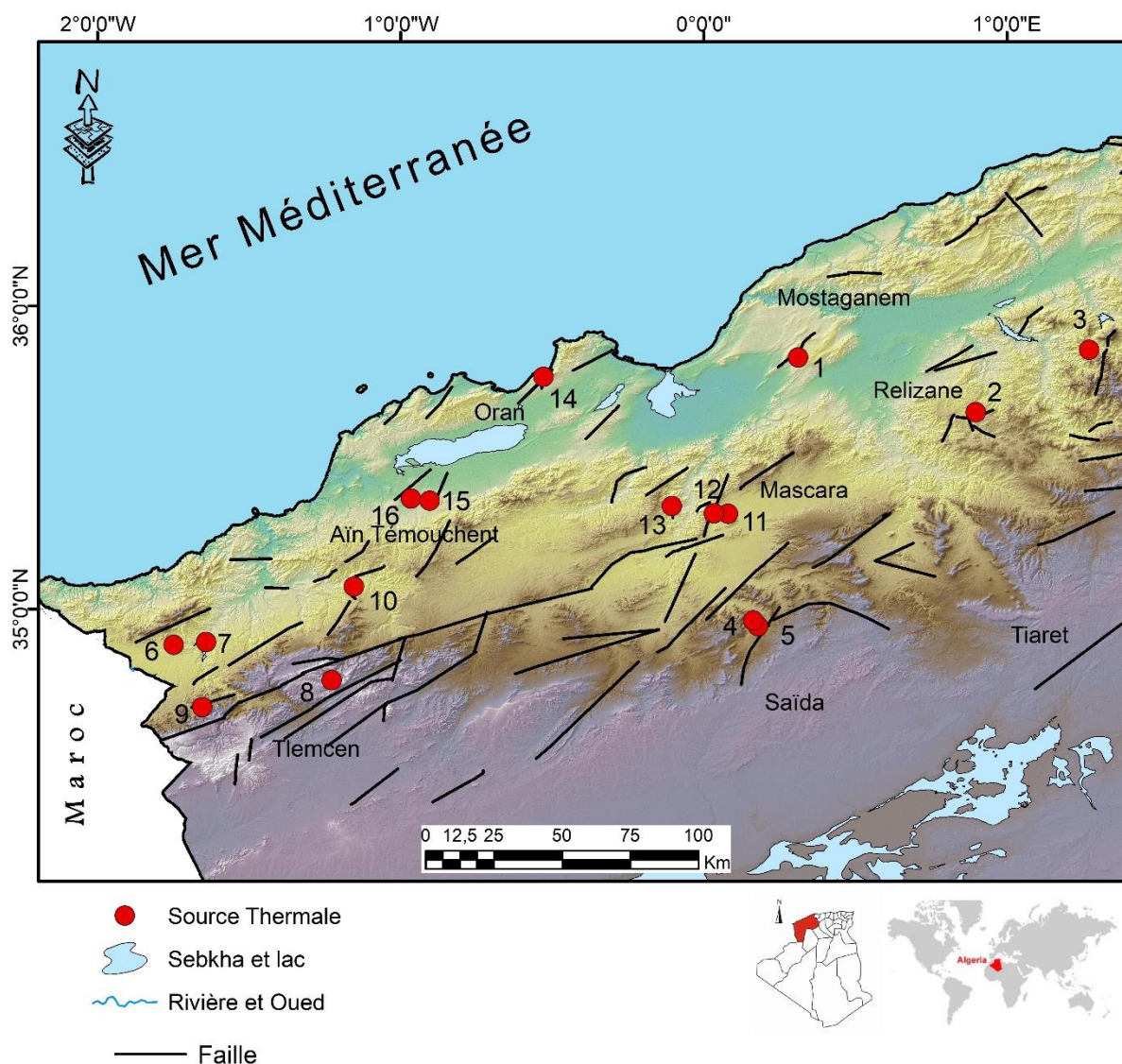


Fig. 11. Relation Faille-sources thermales

(1: Mkeberta; 2: Béni Yessaad; 3: Mentila; 4: Hammam Rabi; 5: Sidi Aïssa; 6: Chiguer; 7: Boughrara; 8: Tahamamit; 9: Ain Hemmam; 10: Sidi Abdelly; 11: Bouhnifia Nekhla; 12: Bouhnifia N°3 El Hamia; 13: El Hammat; 14: Ain Franin; 15: Hammam Bouhdjar; 16: Sidi Aïd)

En utilisant le logiciel RockWorks16 (RockWare Inc, version 2016), nous avons généré une rose des directions de fractures pour notre région d'étude. Cette rose des fractures tectoniques et structurales (comme les failles et les linéaments) dans le Nord-Ouest algérien a montré une orientation générale NE-SW à l'échelle régionale (Fig. 12).

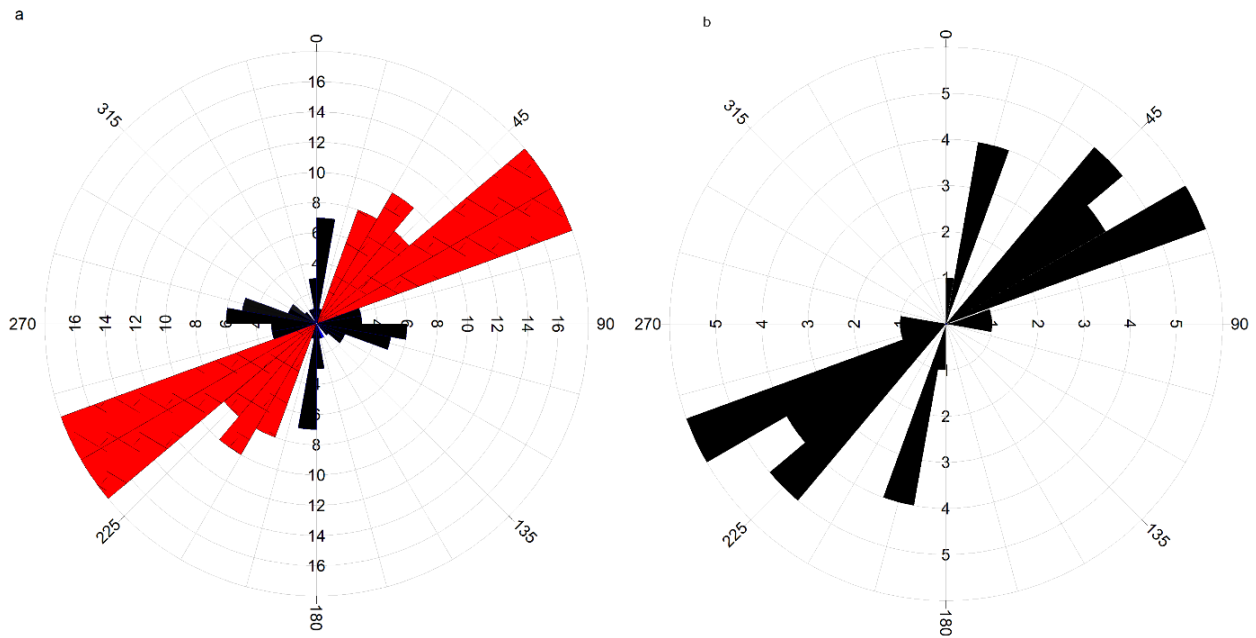


Fig. 12. Rosace des directions des fractures dans le Nord-Ouest algérien : a-linéaments, b-faille

III.1.3. Relation source thermique-sismicité

L'étude de l'activité sismique historique et instrumentale peut aider à localiser la source de l'activité sismique dans l'histoire moderne. Les données de la sismicité présentent un grand intérêt dans ce travail, car la circulation des eaux thermales des profondeurs à la surface peut être directement liée avec la tectonique locale de la région via des fissures (failles, linéaments, etc.). L'Algérie du Nord, dont sa partie occidentale, est une zone à forte activité sismique. Historiquement, elle a connu certains séismes importants comme les deux séismes de l'Asnam (la wilaya de Chélif actuellement) en 1954 et en 1980, d'une magnitude de 6,7 et 7,1 respectivement, le séisme d'Ain Témouchent de magnitude 5,7 en 1999, et plus récemment celui de Bejaia en 2021, avec une magnitude de 5,9, qui sont généralement liés à des activités tectoniques compressives (Meghraoui, 1982).

Verdeil (1982) a mené une étude sur les sources thermales de l'Afrique du Nord et leur relation avec la sismicité. Cette étude a révélé quatre zones sismiques principales au Nord de l'Afrique, dont la majorité des sources étudiées se trouvent dans la zone thermo-sismique Ouest de l'Algérie (Fig. 13). Ces quatre bandes thermo-sismiques, d'orientation générale WNW-ESE, sont, d'Ouest en Est : la bande thermique "Oran-Relizane-Tiaret", la bande thermique "Cherchel-Ténès-Gafsa-Benghazi-Alexandria", la bande thermique "Constantine-El Kef-Maktar" et la bande thermique "Annaba-Tebersouk-Takrouna".

L'analyse de la corrélation entre le thermalisme et la sismicité a révélé que les zones thermales sont souvent délimitées par deux familles de failles : une première orientée N20-40 de sens

senestre et une deuxième de direction N115 de sens dextre, cette dernière étant responsable du séisme d'Al Asnam en octobre 1980 (Verdeil, 1982). La majorité des séismes affectant la région Nord de l'Algérie suivent généralement des bandes orientées NW-SE ou NE-SW, qui représentent les directions principales les plus fréquentes dans le domaine tellien.

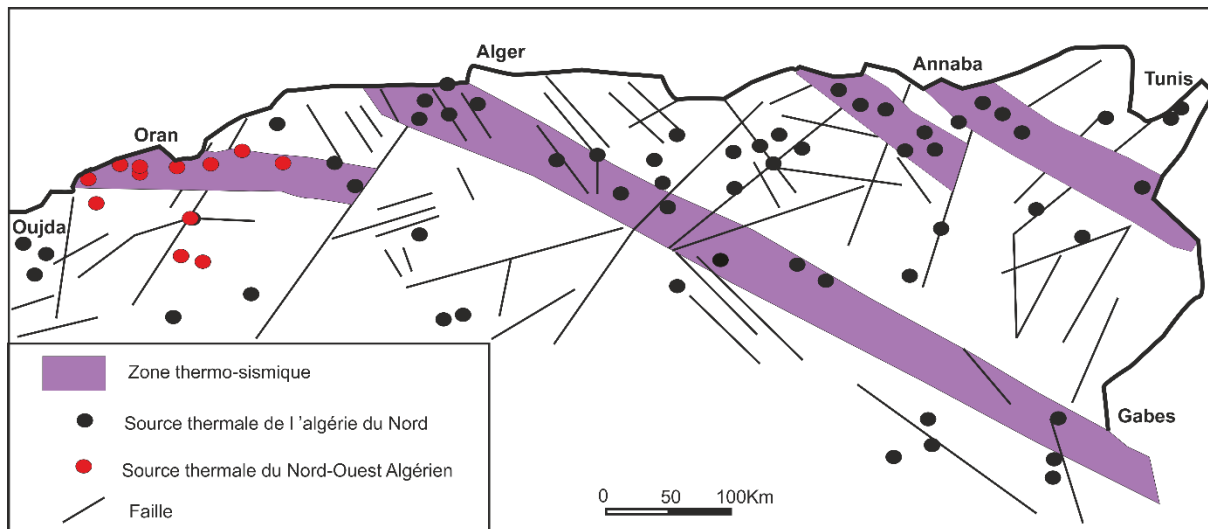


Fig. 13. Les quatre bandes thermo-sismiques en Afrique du Nord (Verdeil, 1982)

Les résultats de l'analyse de la corrélation entre le thermalisme et la sismicité, telle que présentée par Verdeil (1982), peuvent être confirmés par l'utilisation du catalogue sismique de l'histoire tectonique de la région Nord-Ouest de l'Algérie entre la période 1790 à 2016 (Belayadi et al., 2015). En utilisant ce catalogue, une carte de répartition des activités sismiques dans la zone d'étude, couplée à celle des manifestations thermales considérées, a été réalisée (Fig. 14).

Les sources thermales, telles que Hammam Bouhdjar (S15), Sidi Ayd (S16), Hammam Bouhnifia (S11), El Hamia (S12), El Hammat (S13), et Ain Franine (S14), sont clairement situées dans des zones de forte densité et intensité sismique (magnitude > 4). Cette observation confirme l'aspect géostructural des systèmes hydrothermaux du Nord-Ouest algérien, qui semble être influencé par le prolongement des failles dans ces zones et qui favorise le drainage des eaux thermales des profondeurs vers la surface.

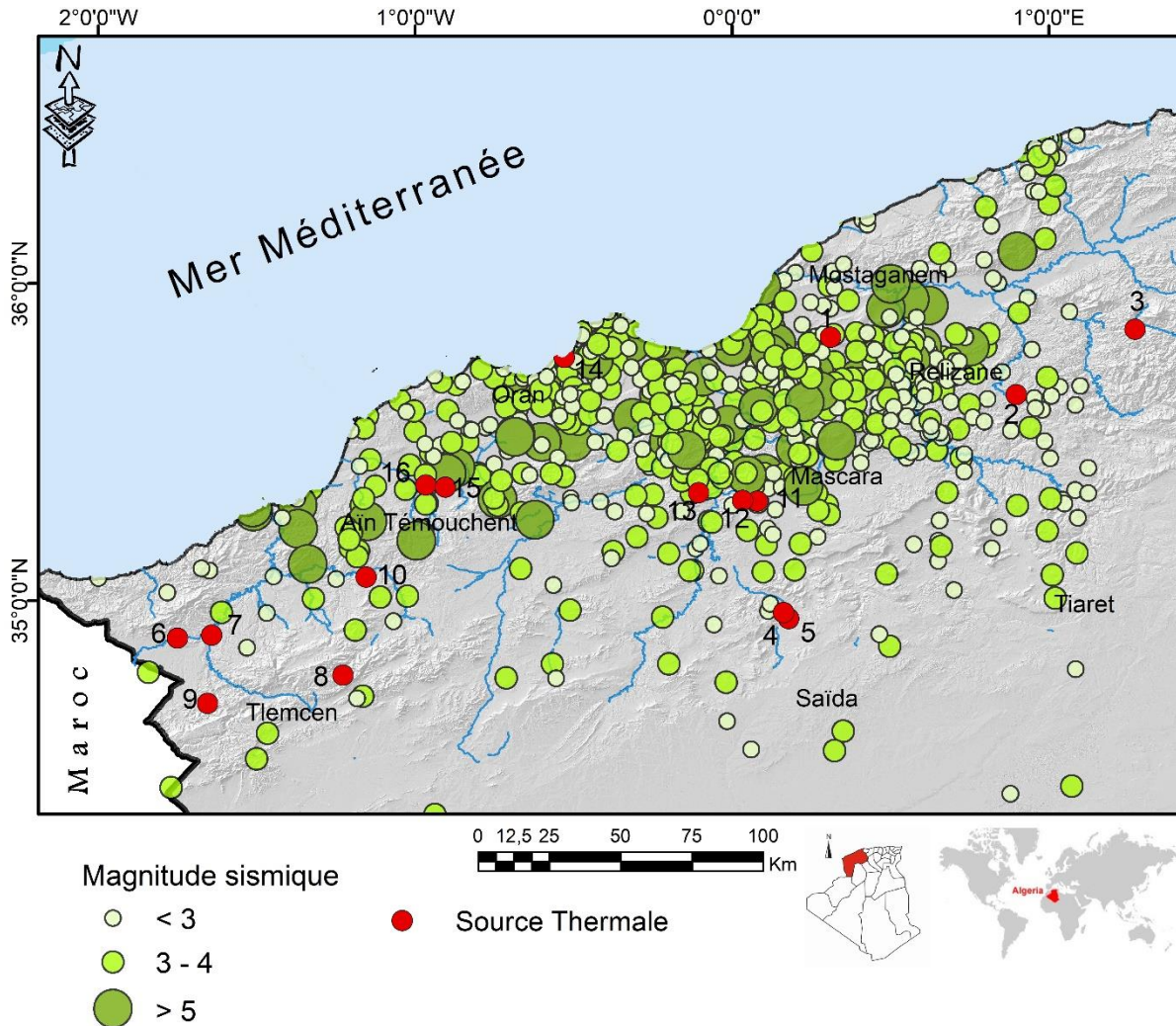


Fig. 14. Relation sismicité- sources thermales

(1: Mkeberta; 2: Béni Yessaad; 3: Mentila; 4: Hammam Rabi; 5: Sidi Aissa; 6: Chiguer; 7: Boughrara; 8: Tahamamit; 9: Ain Hemmam; 10: Sidi Abdelly; 11: Bouhnifia Nekhla; 12: Bouhnifia N°3 Hamia; 13: El Hammat; 14: Ain Franin; 15: Hammam Bouhdjar; 16: Sidi Ayd)

IV. Hydrogéologie du Nord-Ouest algérien

Au cours du Mésozoïque et du Cénozoïque, les mouvements tectoniques dans la région nord-africaine ont donné lieu à la formation de nombreux aquifères, en créant des structures géologiques favorables à l'infiltration et à l'accumulation de l'eau. La figure 15 synthétise les différentes formations hydrogéologiques, pouvant constituer les principaux aquifères dans le Nord-Ouest algérien (Fig. 15). Le type d'aquifère est défini en fonction de l'environnement hydrogéologique, des conditions d'écoulement et de stockage, tandis que la productivité représente le rendement relatif de l'aquifère ou son potentiel en eaux souterraines.

Selon la carte hydrogéologique, il existe deux principaux types d'aquifères dans la région étudiée. Le premier type concerne les aquifères sédimentaires cénozoïques récents et quaternaires non consolidés, présents principalement dans les zones côtières, avec une

productivité modérée à élevée. Le deuxième type concerne les aquifères de grès et de calcaire mésozoïques-cénozoïques, présents dans la partie sud de la région étudiée, notamment dans les zones montagneuses, et qui présentent une productivité élevée à très élevée.

Du point de vue hydrologique, le Nord-Ouest de l'Algérie fait partie des régions semi-arides du bassin méditerranéen. Cette région comprend quatre grands bassins versants, qui sont, de l'Ouest à l'Est, le bassin de la Tafna, celui de la Sebkhah d'Oran, de la Macta, et enfin le bassin du Chelif. Les précipitations annuelles varient fortement dans le temps, ce qui a entraîné une diminution du potentiel en eau de surface, notamment en raison du changement climatique (Hadour et al., 2020). Par conséquent, les ressources en eau de surface de la région ont été affectées. Outre les eaux thermales, la région possède également d'importantes sources minérales froides naturelles et des puits, qui sont souvent utilisés pour la consommation et l'irrigation. Dans cette région, l'eau souterraine est préférée à l'eau de surface pour ces usages.

IV.1. Identification hydrogéologique des systèmes hydrothermaux de l'Algérie Nord occidentale

La reconnaissance des potentialités en ressources géothermales dans la région nécessite l'identification des aquifères géothermiques et la détermination de leurs caractéristiques hydrogéologiques. L'étude hydrogéologique des ressources en eaux de l'Algérie septentrionale, notamment des systèmes hydrothermaux dans le Nord, ont révélé que les formations carbonatées et meubles peuvent constituer de bons réservoirs (Issaadi, 1992 ; Bouchareb-Haouchine, 2012 ; Kedaïd, 2007).

Sur la base de la littérature consultée, une description des principales formations géologiques susceptibles de former de bons réservoirs hydrogéologiques et hydrogéothermiques est donnée ci-dessous :

IV.1.1. Le Trias

Les dépôts triasiques dans le Nord-Ouest algérien sont généralement reconnus par des diapirs qui sont des formations argilo-gypso-salifères. Bien que les formations argileuses-triasiques puissent avoir une perméabilité relativement faible et ne soient pas considérées comme de véritables réservoirs géothermiques, leur nature gypso-saline joue un rôle crucial dans la minéralisation des eaux thermales qui y circulent. Les sources émergent de ces formations ou à proximité présentent souvent une eau très minéralisée chimiquement, dominée par les sulfates ou les chlorures. C'est le cas de la source thermale d'Ain Franine.

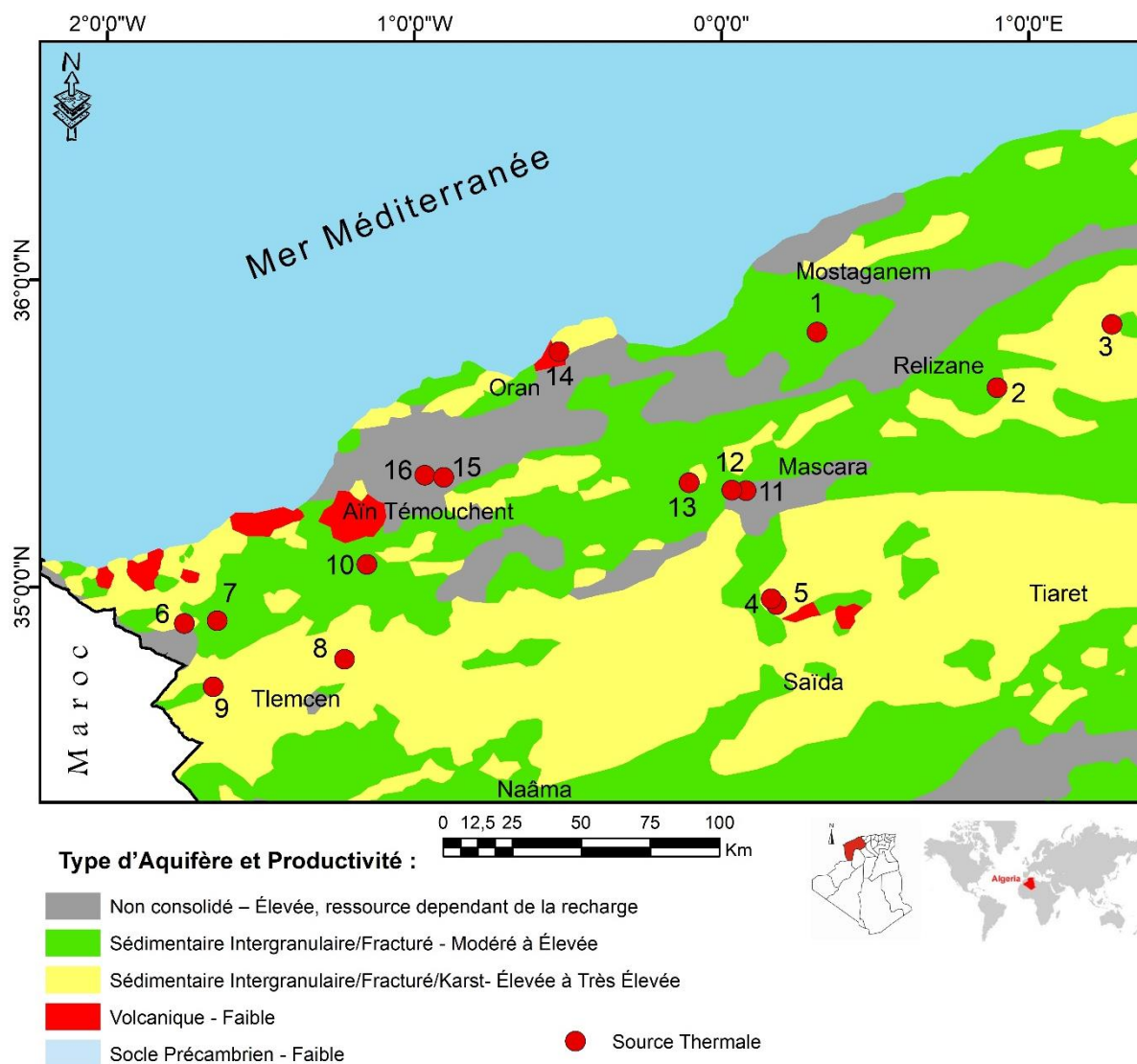


Fig. 15. Carte Hydrogéologique et types d'aquifères du Nord-Ouest algérien
(Data source : *Chabour et al., 2018*)

(1: Mkeberta; 2: Béni Yessaad; 3: Mentila; 4: Hammam Rabi; 5: Sidi Aissa; 6: Chiguer; 7: Boughrara; 8: Tahamamit; 9: Ain Hemmam; 10: Sidi Abdelly; 11: Bouhnifia Nekhla; 12: Bouhnifia N°3 Hamia; 13: El Hammat; 14: Ain Franin; 15: Hammam Bouhdjar; 16: Sidi Ayd)

IV.1.2. Le Jurassique

Le Nord-Ouest algérien est occupé par des affleurements jurassiques importants, il constitue la marge sud du bassin de la Tafna, les monts de Tlemcen tout au long du domaine Tlemcenien jusqu'à Saida (la limite méridionale de la région d'étude). La sédimentation Jurassique est majoritairement représentée par des roches carbonatées : dolomies, calcaires et à moindre degré, des marnes. Ces formations abritent des réservoirs très importants, en raison de leur nature lithologique et morphologique, fracturées et fissurées (karsts), pouvant être fortement perméables. Du point de vue hydrogéochimique, les eaux qui circulent dans des formations carbonatées sont moyennement minéralisées, et souvent le faciès bicarbonaté est prédominant.

Les sources thermales de Saida émergent dans ces formations carbonatées et peuvent fournir une importante ressource en eau géothermale.

IV.1.3. Le Crétacé

Les formations crétacées affleurent faiblement au Nord-Ouest algérien. Elles se composent de roches carbonatées dans le domaine entre l'Atlas tellien et les hauts plateaux, de marnes et grès à la limite sud du Bas Chélif (Monts des Béni Chougrane), de grès à passées de dolomies gréseuses (Monts de Tessala, Tlemcen, Daïa et Saïda), ainsi que de grès et marnes à passées calcareuses et dolomitiques à Tlemcen. Bien que ces formations ne soient pas aussi propices que celles du Jurassique pour former des réservoirs géothermiques dans la région, les propriétés carbonatées et gréseuses de leurs sédiments en font des réservoirs avec un potentiel hydrique très important.

IV.1.4. Le Néogène

Les formations miocènes sont importantes dans le bassin du Bas Chélif et le bassin de la Tafna, comme mentionné dans le chapitre sur la géologie. Elles sont représentées par des grès, des marnes, des calcaires et des grès calcareux, ainsi que des niveaux grésio-conglomératiques. En raison de cette nature géologique, le miocène peut constituer de bons réservoirs. De nombreuses sources froides et thermales émergent à travers ces formations, notamment les sources thermales de Mascara.

IV.1.5. Le Quaternaire

Les formations quaternaires du Nord-Ouest algérien sont principalement localisées au niveau de la plaine du Chélif et à la bordure Sud du Littoral Oranais, sous forme de formations continentales telles que des sables, des graviers, des argiles, des limons et des gypses. Bien que peu de sources d'eau apparaissent à travers ces sédiments dans la région d'étude, elles sont néanmoins importantes d'un point de vue géothermique, comme la source de hammam Bouhdjar (Sidi Ayd) qui affleure à la surface de cette sédimentation récente. De plus, les eaux de surface, y compris les lacs, sebkha et les rivières, circulent généralement à travers les dépôts quaternaires.

IV.2. Répartition des sources thermales du Nord-Ouest algérien

Au cours de la campagne de terrain menée dans le cadre de cette thèse, nous avons considéré 16 sources thermales, réparties dans différentes zones géographiques du Nord-Ouest algérien, comme nous avons mentionnée précédemment (Fig. 16). Ces émergences sont souvent éloignées les unes des autres, de plusieurs dizaines, voire de centaines de kilomètres, et réparties à travers un certain nombre de communes et wilayas telles que Tlemcen, Mascara, Aïn Temouchent, Mostaganem et Relizane.

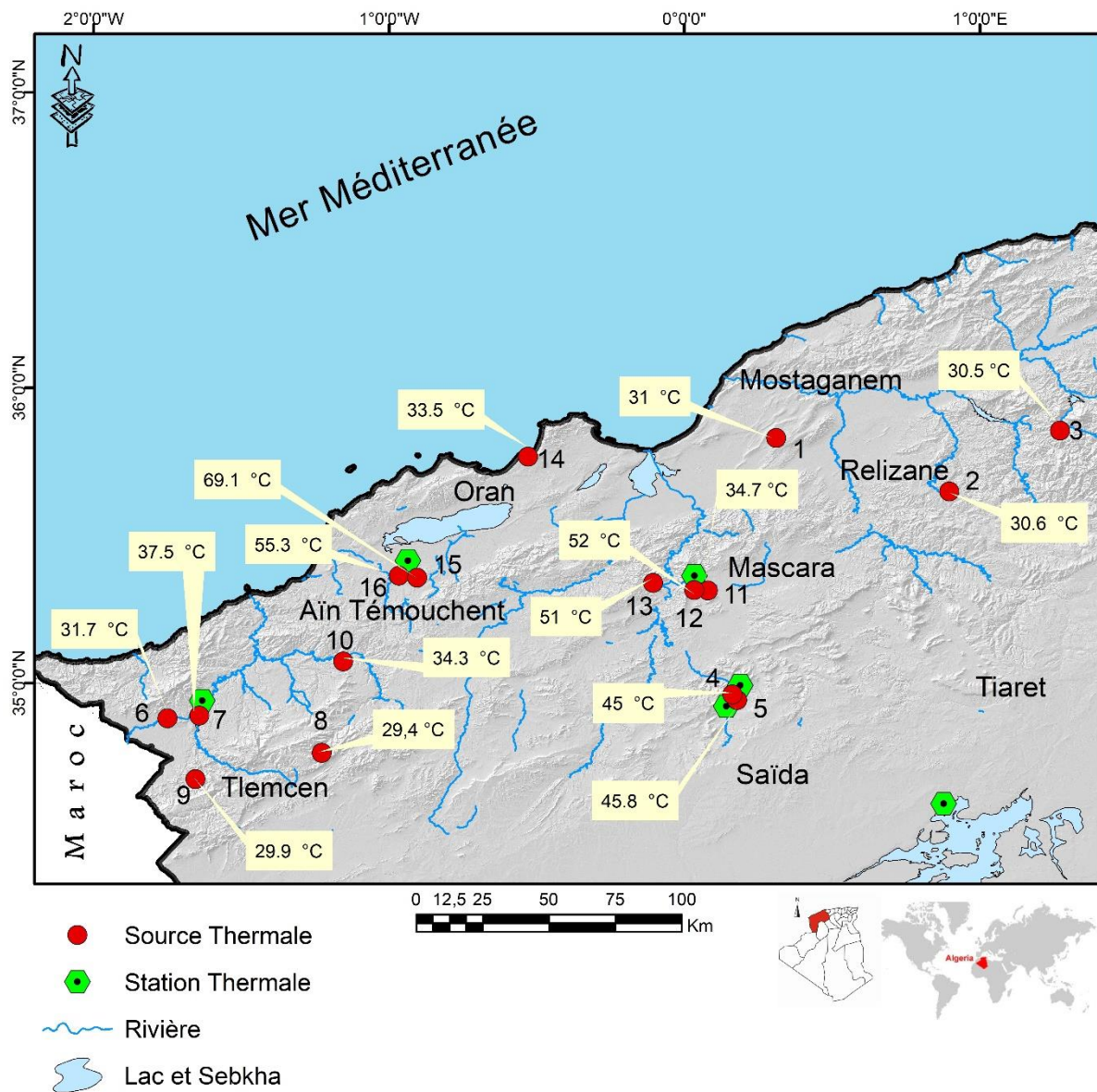


Fig. 16. Répartition des sources thermales du Nord-Ouest algérien et leurs températures mesurées en degrés Celsius

(1: Mkeberta; 2: Béni Yessaad; 3: Mentila; 4: Hammam Rabi; 5: Sidi Aïssa; 6: Chiguer; 7: Boughrara; 8: Tahamamit; 9: Ain Hemmam; 10: Sidi Abdelly; 11: Bouhnifia Nekhla; 12: Bouhnifia N°3 Hamia; 13: El Hammat; 14: Ain Franin; 15: Hammam Bouhdjar; 16: Sidi Ayd)

Les sources thermales d'Ain Temouchent, Mascara et Saïda se distinguent des autres sources de la région par leurs températures d'eau élevées, les plus chaudes du Nord-Ouest algérien, dépassant 43°C, ce qui les qualifie de sources hyperthermales (Fig. 17).

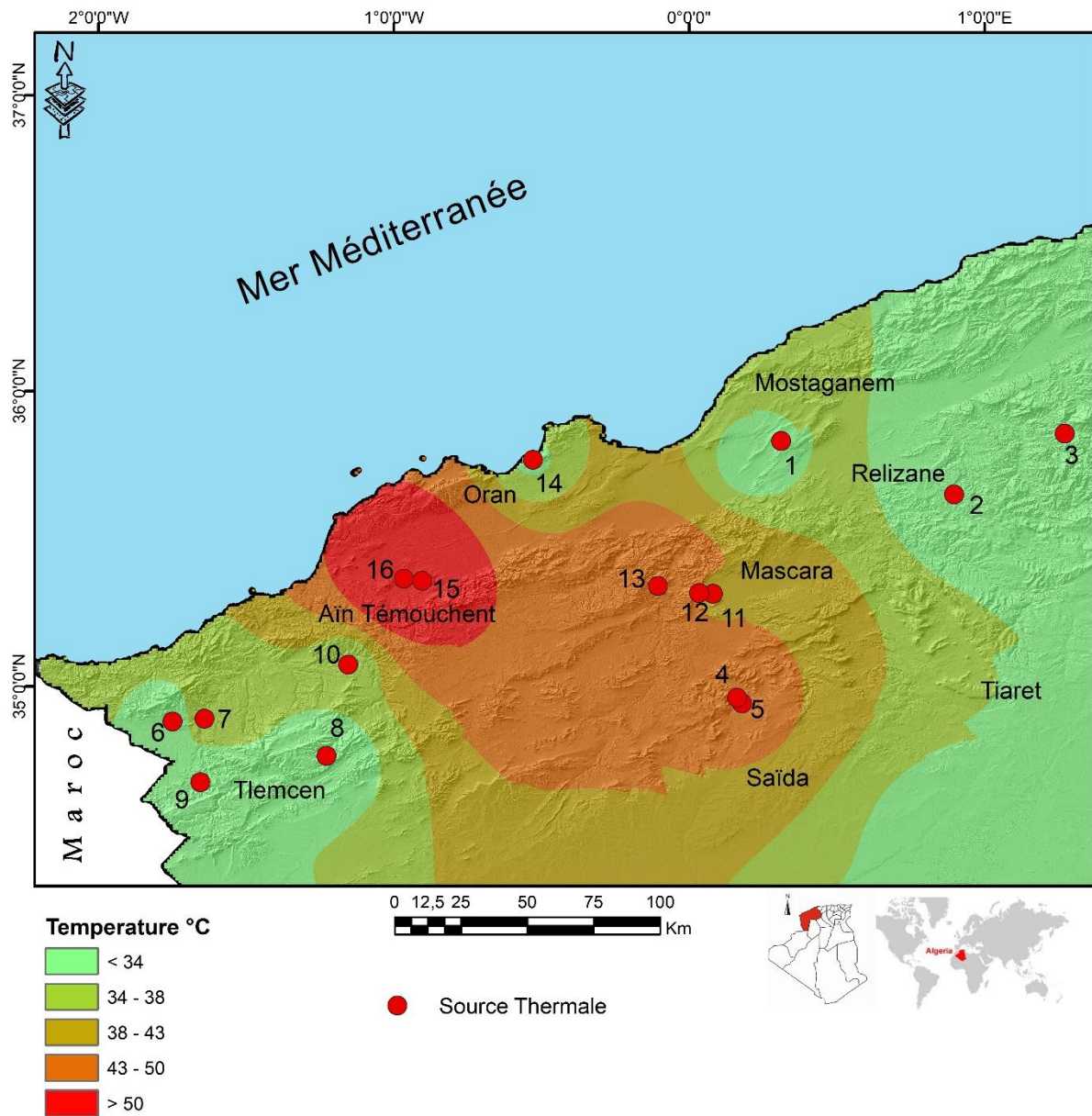


Fig. 17. Carte des températures des sources thermales du Nord-Ouest algérien

(1: Mkeberta; 2: Béni Yessaad; 3: Mentila; 4: Hammam Rabi; 5: Sidi Aïssa; 6: Chiguer; 7: Boughrara; 8: Tahamamit; 9: Ain Hemmam; 10: Sidi Abdelly; 11: Bouhnifia Nekhla; 12: Bouhnifia N°3 Hamia; 13: El Hammat; 14: Ain Franin; 15: Hammam Bouhdjar; 16: Sidi Aïd)

IV.3. Conditions d'émergences des sources thermales

IV.3.1. Les sources thermales liées au bassin du Bas-Chélif (BC)

Les sources de Bouhnifia sont parmi les manifestations géothermales les plus importantes dans le Nord-Ouest algérien. À travers les travertins, les eaux thermales affleurent sur la bordure sud des formations telliennes, représentées par des marnes bleues et des calcaires à silex de l'Eocène inférieur. Ces eaux sortent le long d'une faille orientée Sud-Est Nord-Ouest sur la rive droite de l'oued el Hammam (Issaadi, 1992). La présence des travertins et de quelques gisements de silice autour de la zone thermale de Hammam Bouhnifia est probablement due à la précipitation de calcite et de silice (Belhai et al., 2016). Les roches volcaniques du plio-quadernaire de la région

pourraient être liées au système géothermal de Bouhnifia (Fekraoui et Abouriche, 1995). Les eaux de la source thermale principale (Bouhnifia Nekhla) alimentent la station thermale la plus ancienne de l'Ouest algérien (depuis 1910).

Plus à l'Est, la source thermale de Béni Yessaad émerge à travers les formations crétacées. Elle se localise sur la rive de l'oued el Malah à Mendass (Relizane). Les eaux de cette source sont incolores, des odeurs d'œufs pourris avec une présence de dépôt de sulfure (de couleur jaunâtre), des algues et de boues. Ces mêmes caractéristiques sont observées au niveau de la source thermale de Mentila. Cette dernière se trouve à la limite Est de la région d'étude. La source de Mentila jaillit des formations schisto-gréseuses du Crétacé moyen (Albo-aptien). Les eaux thermales émergent à travers une faille considérée comme l'accident tectonique principale, qui fait remonter l'Albien au niveau du Sénonien.

IV.3.2. Les sources thermales du Littoral (LI)

Le système hydrothermal de Hammam Bouhadjar est situé au NE d'Ain Temouchent dans l'étroite dépression délimitant le bassin de la M'leta. Il s'agit d'une zone géologiquement effondrée, formée après la mise en place des nappes telliennes, entre les montagnes littorales oranaises au Nord, et le massif de Tessala au Sud. Ce sont essentiellement des failles et du volcanisme, qui sont responsables de l'effondrement néogène qui caractérise cette région (Belhai et al., 2016).

Les unités de la nappe tellienne et le néogène post-nappe sont les principaux dépôts de ce système hydrothermal (Fig. 18). Les grès constituent probablement l'aquifère géothermal de ce système. Les sources thermales (source Hammam Bouhadjar et Sidi Ayd) émergent à travers les dépôts de travertins, traversés par des structures faillées de différentes épaisseurs. Les eaux thermales circulent à travers ces fractures. Selon Fekraoui et Abouriche (1995), l'hydrothermalisme de la région de Hammam Bouhdjar pourrait être lié au volcanisme plio-quadernaires.

Au bord du Littoral Oranais, à une dizaine de mètres de la mer méditerranée, l'émergence de la source thermale d'Ain Franine se fait à la faveur d'une faille de direction Nord-Sud qui met en contact les formations gypseuses du Trias avec les marnes du Miocène, au pied du massif schisteux (Montagne des Lions, Oran) (Fig. 19). Selon quelque tradition orale, l'apparition de l'eau thermale de cette source est la conséquence directe d'un séisme en 1929. Selon les observations de terrain, l'affleurement du gypse à proximité de la source serait lié à la présence d'un diapir.

À l'Est d'Oran, la source de Mkeberta, située dans la commune de Sidi Charef (région de Mostaganem), ferait partie du groupe des sources du Littoral oranais. Les eaux de cette source thermique sont incolores, mais sont caractérisées par une forte odeur d'œufs pourris, ce qui est caractéristique du dégagement du sulfure d'hydrogène, H₂S.

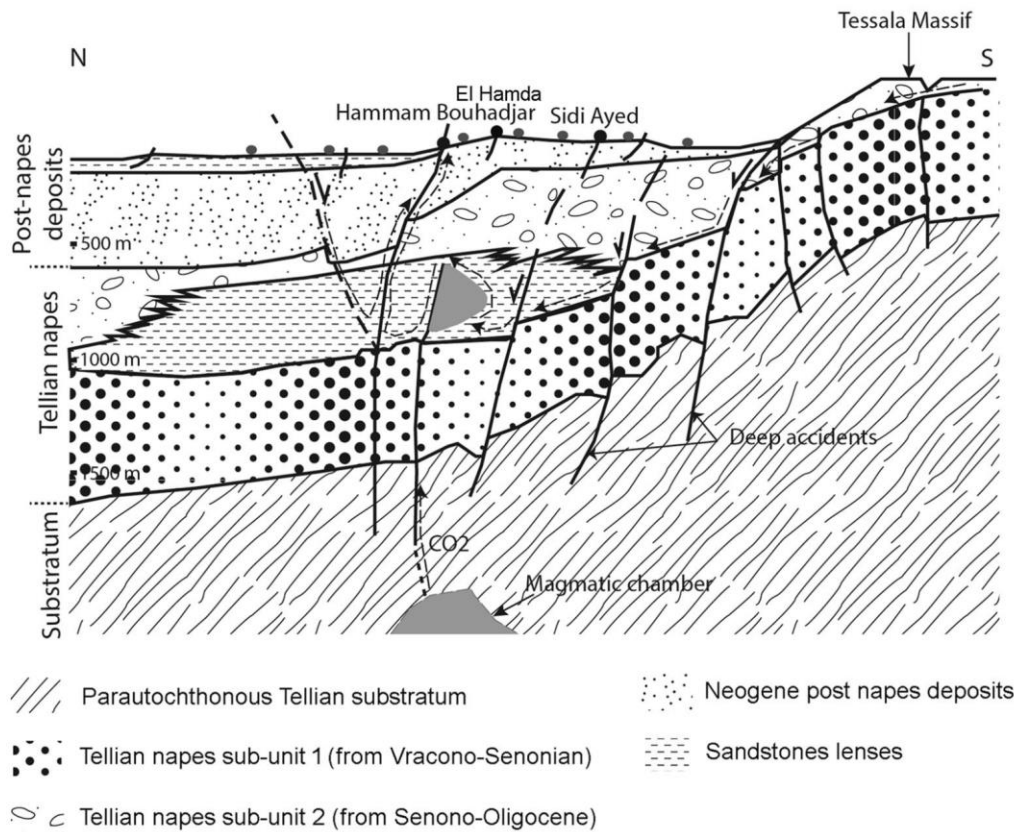


Fig. 18. Schéma synthétique expliquant le système hydrothermal de Hammam Bouhadjar (In Bouyahiaoui et al., 2017)

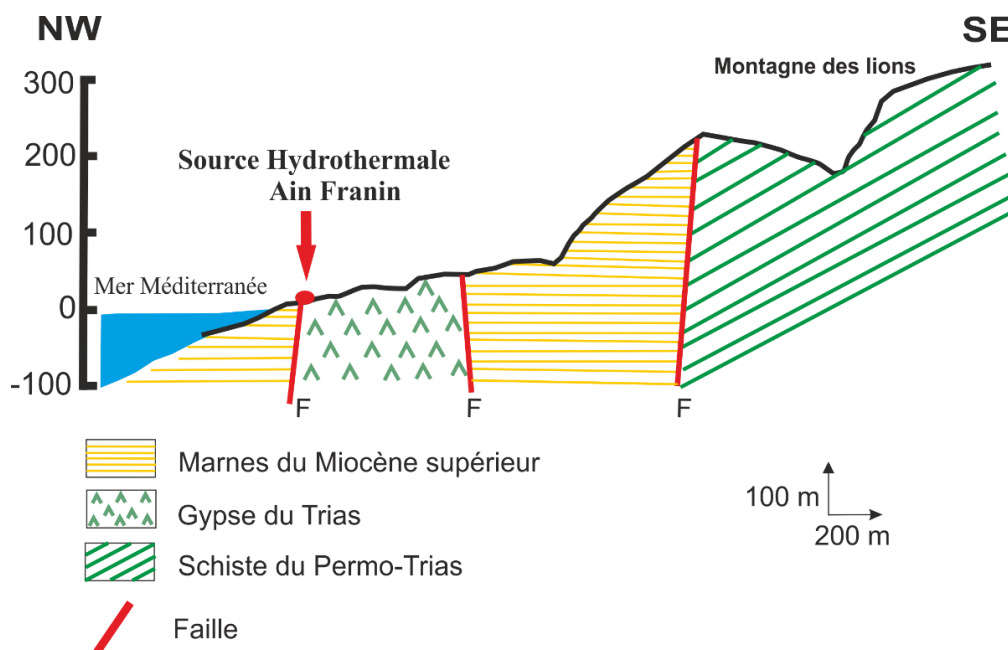


Fig. 19. Coupe géologique de la source thermique Ain Franin (Demena, 1956)

IV.3.3. Les sources thermales liées au Bassin de la Tafna (BT)

Dans le bassin de la Tafna, à l'extrême Ouest de la région d'étude, près de la frontière algéro-marocaine, la source thermale de Chiguer se trouve dans le sous-bassin de l'oued Mouileh, près de l'oued principal de la Tafna. Elle émerge dans le Miocène qui constitue les principaux dépôts géologiques du bassin de la Tafna. Au niveau du griffon de la source, les formations sont généralement constituées de sols calcaires, de sols calciques et de sols rouges formés de marnes du Miocène, couvrant une grande partie de la plaine de Maghnia.

A l'Est de la source de Chiguer, la source thermale de Hammam Boughrara qui alimente la station thermale de Hammam Boughrara, est localisée géographiquement à 11 Km de la ville de Maghnia. Elle se trouve sur les bords de l'oued Tafna, au droit d'un bassin d'effondrement comblé de dépôts miocènes et pliocènes et culminant à 282 m d'altitude. La source de Boughrara émerge des conglomérats Miocènes et des marnes sableuses à proximité d'un dyke de rhyolite et de roches volcaniques, considérées par certains auteurs comme des témoins du volcanisme dans la région ([Boukhedimi, 2009](#)).

À la faveur d'une faille de direction NNE-SSW, la source d'Ain Hammam émerge sur la rive gauche de l'oued Tafna, à la limite entre le bassin de la Tafna et les Monts de Tlemcen. La source thermale de Tahamamit apparaît également à la faveur d'un accident tectonique. L'émergence de cette source se fait au niveau des formations jurassiques et miocènes des Monts de Tlemcen et du bassin de la Tafna. Dans la plaine de Sidi Abdelly, au Sud-Est du bassin de la Tafna, la source thermale de Sidi Abdelly affleure sur la rive Ouest de l'oued Isser, à la faveur d'une faille de direction NE-SW. Elle émerge à travers les dépôts miocènes des formations de marnes et calcaires. Les dolomies constituent probablement le réservoir de cette source, qui se caractérise par un important dégazage de CO₂.

IV.3.4. Les sources du domaine Tlemcenien (DMT) (Saida)

Les sources thermales de ce domaine (Hammam Rabi et Sidi Aissa) sont situées dans le bassin versant de l'oued Saida, à quelques centaines de mètres de son cours principal. La source de Hammam Rabi émerge à travers les formations du Jurassique, principalement les marnes du Callovo-oxfordien, à la faveur d'une profonde faille, nommée la Transversale de Saida, qui joue le rôle de conduit jusqu'à son affleurement à la surface. Au sein de cette série du Jurassique, se trouvent différentes formations, principalement des dolomies, des marnes et des grès. Le système hydrothermal de cette source est alimenté par le réservoir dolomitique de l'Hettangien-Pliensbachien ([Fig. 20](#)). Dans un tel contexte géologique, une partie des eaux thermales de cette

source pourrait se déverser directement dans les alluvions de l'oued, sans aucune émergence visible à la surface ou au bord de l'oued.

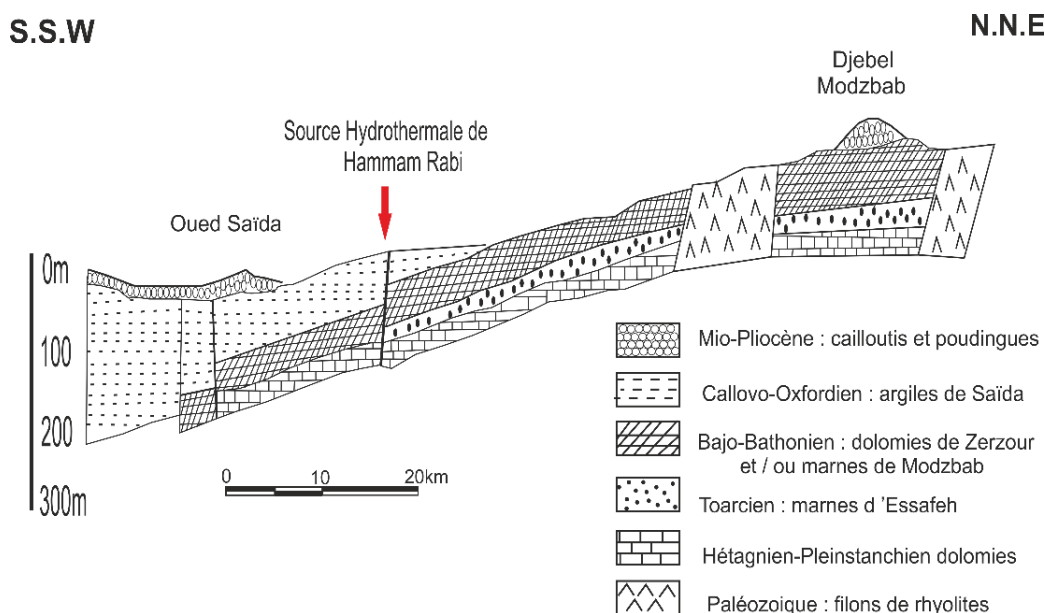


Fig. 20. Coupe géologique de la source thermique Hammam Rabi (Saida) (Pitaud, 1973)

V. Conclusion

La tectonique et les éléments structuraux sont donc des facteurs clés qui influencent la localisation et la distribution des sources thermales dans cette région. Cette analyse morpho-structurale de la zone d'étude suggère que le Nord-Ouest de l'Algérie a connu des manifestations tectoniques cassantes importantes dans le passé et le présent, telles que les séismes, les failles et linéaments, ce qui a eu un impact sur la géologie locale. Cette analyse montre également que ces éléments structuraux seraient liés aux systèmes hydrothermaux de la région étudiée. En effet, la tectonique a joué un rôle important dans l'émergence à la surface des eaux des sources thermales, en drainant leur circulation souterraine.

Les linéaments structuraux, jouent également un rôle important dans l'apparition des systèmes hydrothermaux. Les zones présentant une forte densité de linéaments sont souvent associées à la présence de sources thermales dans la région.

Globalement, les fractures du Nord-Ouest de l'Algérie sont principalement orientées NE-SW.

L'analyse du contexte hydrogéologique de la région d'étude a permis une meilleure compréhension des caractéristiques et conditions d'émergence des sources thermales. Les systèmes thermaux étudiés présentent une grande variabilité hydrogéologique. Pour la plupart des sources étudiées, les principaux réservoirs correspondent aux formations essentiellement carbonatées et gréseuses du Jurassique, Miocène et Plio-quadernaire.

En conclusion, il est donc clair que les systèmes hydrothermaux du Nord-Ouest algérien sont étroitement liés aux contextes tectoniques, structuraux et hydrogéologiques de la région. Les mouvements tectoniques ont créé des structures qui permettent la circulation de l'eau souterraine en profondeur, à travers des réseaux de fissures, failles, fractures, avant de remonter à la surface et d'y émerger sous forme de source thermale.

Chapitre III

Hydrochimie des eaux thermales

Introduction

L'étude hydrochimique des eaux thermales est basée sur une analyse détaillée des caractéristiques physiques et chimiques de ces eaux, qui sont généralement riches en minéraux dissous. Ces eaux sont fréquemment utilisées à des fins thérapeutiques, notamment en Algérie où la plupart des eaux thermales possèdent des propriétés curatives.

Les sources thermales apparaissent souvent dans des zones géothermiques où l'eau est chauffée dans les profondeurs de la terre. La répartition de ces sources en Algérie occidentale est fortement liée à la nature géologique, tectonique, structurale et hydrogéologique de la région. Lorsque l'eau chaude circule à travers les roches, elle dissout des minéraux tels que le soufre, le calcium, le magnésium et le potassium. Les eaux thermales peuvent également contenir des gaz dissous tels que le dioxyde de carbone, le sulfure d'hydrogène et le méthane.

L'analyse hydrochimique de l'eau thermale peut révéler des informations sur sa composition chimique, son origine, son âge, sa température et son potentiel thérapeutique. Les propriétés chimiques et physiques des eaux thermales peuvent également être utilisées pour déterminer l'efficacité des divers traitements thérapeutiques.

L'hydrochimie des eaux thermales est importante pour la compréhension des écosystèmes géothermiques, des processus géologiques et de la santé humaine. Cet outil permet de comprendre les processus géochimiques qui se produisent dans les aquifères et de déterminer l'origine et la qualité de l'eau souterraine. L'hydrogéochimie actuelle et les investigations hydrogéochimiques constituent un très bon moyen pour expliquer les conditions des circuits souterrains des systèmes hydrothermaux. Des études antérieures, menées en Algérie septentrionale sur différentes sources thermales, ont montré que l'hydrogéochimie des eaux thermales et leur localisation sont fortement influencées par les caractéristiques géologiques régionales (Issaadi, 1992 ; Fekraoui, 2007 ; Saibi, 2009 ; Bouchareb-Haouchine, 2012 ; Ait Ouali et al., 2019 ; Bouaicha et al., 2019).

Des campagnes de terrain ont été menées en mai 2018 et janvier 2019 pour prélever des échantillons d'eaux thermales dans la zone d'étude. Plusieurs paramètres physiques ont été mesurés in situ, tels que la température, le pH, la conductivité et l'oxygène dissous. Les échantillons d'eau prélevés ont été analysés au Laboratoire d'Hydrogéologie de l'Université d'Avignon (LHA) en France, pour déterminer les éléments chimiques majeurs et traces.

Diverses méthodes hydrochimiques ont été appliquées pour mieux comprendre la composition chimique de l'eau, son origine et sa relation avec la géologie régionale.

Dans le chapitre précédent, nous avons regroupé les sources par domaine, essentiellement sur la base des contextes géographique et géologique de leurs émergence : ce sont les sources liées au Littoral Oranais, celles liées au bassin de la Tafna, celles liées au domaine Tlemcenien et celles liées au bassin du Chélif.

I. Matériel et Méthodes

Sur chaque site d'échantillonnage, les positions géographiques et l'altitude ont été enregistrés à l'aide d'un système de positionnement global (GPS). Des échantillons d'eau ont été prélevés dans 16 sources thermales pour l'analyse des principaux cations, oligo-éléments et anions. Tous les échantillons d'eau destinés à l'analyse hydrochimique des cations et des anions ont été filtrés à travers des membranes de 0,45 μm et stockés dans des flacons préalablement lavés de 60 mL. Les paramètres physiques tels que la température, le pH et la conductivité (EC) ont été mesurés in situ à l'aide d'un multimètre numérique. La sonde de mesure choisie permettait d'effectuer les mesures sur l'intervalle de température de l'eau. Les échantillons ont été filtrés et acidifiés avec l'acide nitrique pur (HNO_3) pour les analyses des cations et des éléments traces.

Les valeurs de pH mesurées sur le terrain ont été comparées à celles mesurées au laboratoire afin de s'assurer que le pH des échantillons d'eau n'a pas été affecté pendant les phases de transport et de stockage. Comme il n'y avait aucune variation observée entre les valeurs de pH mesurées in situ et ex situ, les résultats des analyses chimiques (par exemple, HCO_3^-) effectuées dans les 3 à 5 jours suivant l'échantillonnage n'ont pas été compromis. Les analyses chimiques (cations et anions) ont été réalisées par chromatographie ionique à l'aide d'un système Dionex au Laboratoire d'Hydrogéologie de l'Université d'Avignon en 2018 (France).

L'analyse des éléments traces est réalisée au laboratoire de chimie AETE-ISO Hydrosience - Université de Montpellier (FR) à l'aide d'un spectromètre de masse à plasma couplé par induction (ICP-MS). Le programme de modélisation géochimique "PHREEQC", a été utilisé pour calculer les indices de saturation des minéraux des eaux ([Pakhurst and Appelo, 1999](#)).

II. Caractéristiques physico-chimiques des eaux

II.1. Etude des paramètres physiques

II.1.1. La température

La température des eaux thermales au niveau de l'émergence peut parfois ne pas être représentative de la température réelle du réservoir géothermal, en raison du refroidissement qui peut se produire tout au long du trajet parcouru par ces eaux jusqu'à la surface. Ce refroidissement peut se produire

de différentes manières, comme le dégazage, les échanges thermiques avec les parois du conduit hydrothermal et, le plus souvent, par mélange avec des eaux souterraines froides. La température joue aussi un rôle dans la dissociation des sels dissous ainsi que dans la détermination du pH.

La gamme de températures mesurées à l'émergence des sources thermales varie de 30°C à 69,1°C, avec une valeur minimale enregistrée pour les eaux de Tahamamit et une valeur maximale pour la source de Hammam Bouhdjar (voir Fig. 16 page 39).

En fonction des valeurs de la température mesurée, une classification des eaux est donnée (Tableau 2 et Fig. 21) :

- La première classe : Eaux froides $T < 15^{\circ}\text{C}$
- Deuxième classe : Eaux hypothermales $15^{\circ}\text{C} < T < 35^{\circ}\text{C}$
- Troisième classe : Eaux mésothermales $35^{\circ}\text{C} < T < 50^{\circ}\text{C}$
- Quatrième classe : Eaux hyperthermales $T > 50^{\circ}\text{C}$

Tableau 2. Classification des eaux en fonction de leur température

Code	Nom	Température en °C	Classification des eaux en fonctions des températures
S1	Mkeberta	31	Eaux hypothermales
S2	Béni Yessaad	30,6	Eaux hypothermales
S3	Mentila	30,5	Eaux hypothermales
S4	Hammam Rabi	45,8	Eaux mésothermales
S5	Sidi Aissa	45	Eaux mésothermales
S6	Chiguer	31,7	Eaux hypothermales
S7	Bouhrara	37,5	Eaux mésothermales
S8	Tahamamit	29,4	Eaux hypothermales
S9	Ain Hammam	29,9	Eaux hypothermales
S10	Sidi Abdely	34,3	Eaux hypothermales
S11	Nekhla (Bouhnifia)	34,7	Eaux hypothermales
S12	El Hamia N ^o 3	52	Eaux hyperthermales
S13	El hammat	51	Eaux hyperthermales
S14	Ain Franin	33,5	Eaux hypothermales
S15	Hamam Bouhdjar	69,1	Eaux hyperthermales
S16	Sidi Ayd	55,3	Eaux hyperthermales

-

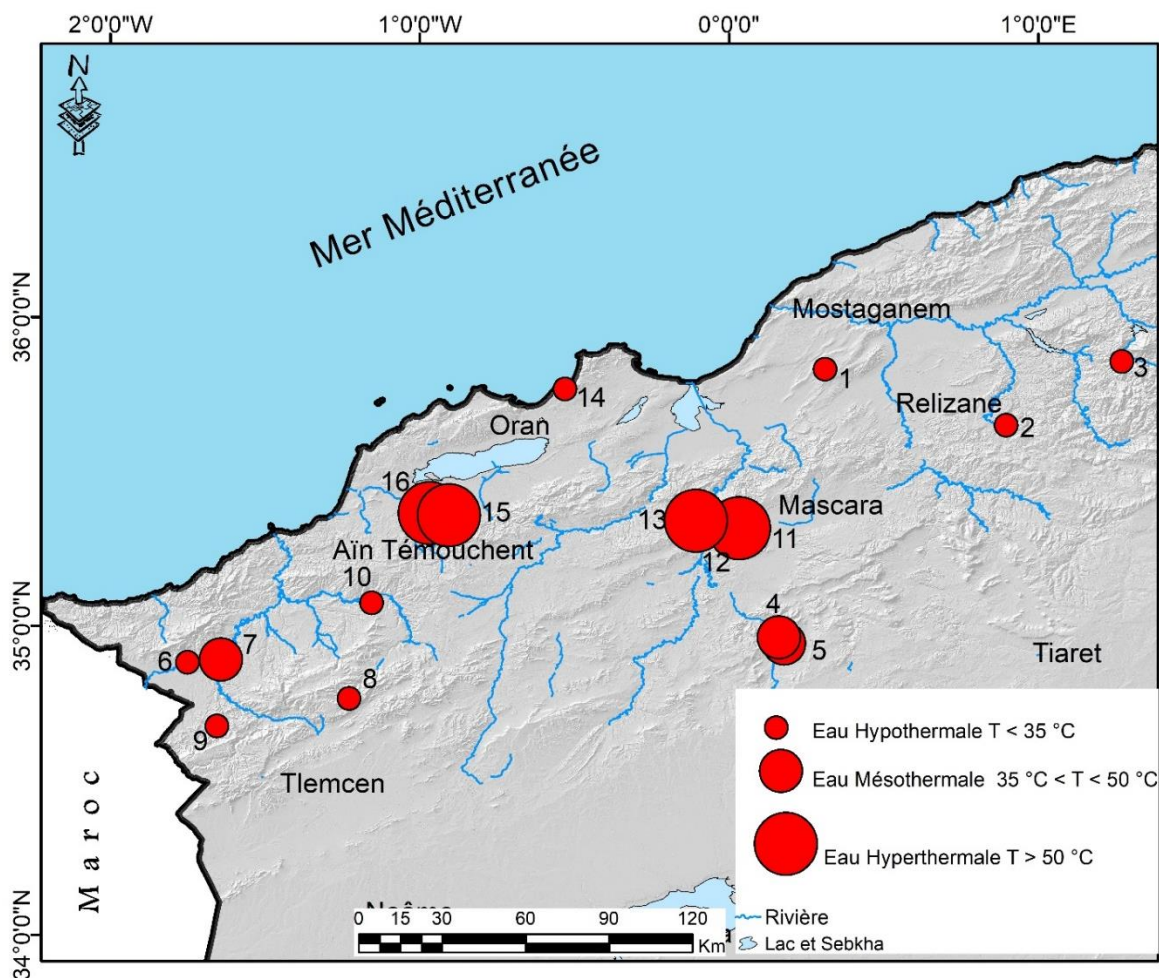


Fig. 21. Différentes classes des températures des sources thermales étudiées

(1: Mkeberta; 2: Béni Yessaad; 3: Mentila; 4: Hammam Rabi; 5: Sidi Aissa; 6: Chiguer; 7: Boughrara; 8: Tahamamit; 9: Ain Hemmam; 10: Sidi Abdelly; 11: Bouhniifia Nekhla; 12: Bouhniifia N^o3 Hamia; 13: El Hammat; 14: Ain Franin; 15: Hammam Bouhdjar; 16: Sidi Ayd)

II.1.2. La conductivité électrique (CE)

La conductivité électrique dépend de la quantité d'ions présents dans l'eau, et elle est liée à la teneur en ions dissous dans l'eau. Elle peut varier en fonction de la température, de la salinité, de la présence d'impuretés et d'autres facteurs. La conductivité électrique est souvent utilisée pour caractériser les différences entre les eaux de source froide, les eaux minérales et les sources thermales, car ces types d'eau peuvent avoir des concentrations ioniques très différentes. La conductivité des eaux thermales de l'ouest algérien varie considérablement, allant de 642 à 82200 $\mu\text{S}/\text{cm}$, mesurée respectivement dans les sources de Boughrara et Mentila (Tableau 3).

II.1.3. La minéralisation

La minéralisation des eaux est un paramètre important à considérer dans l'analyse de l'eau. Elle est fonction de la conductivité électrique et donc, de la quantité et variété de sels minéraux dissous dans l'eau, tels que le calcium, le magnésium, le sodium, le potassium, le sulfate, le carbonate, le

chlorure, etc. La minéralisation de l'eau peut varier en fonction de la nature géologique du sol et des roches traversées par l'eau souterraine, ainsi que du temps de contact entre l'eau et les minéraux, qui dépend de la vitesse de percolation de l'eau dans le sous-sol. Les valeurs de la minéralisation de nos échantillons, en fonction de leur conductivité sont représentées sur le tableau 3.

Selon Issaadi (1992), en fonction de leurs conductivités, les sources minérales et thermales de l'Algérie sont classées en 4 groupes :

- Groupe 1 : conductivité < 2000 $\mu\text{s/cm}$
- Groupe 2 : conductivité comprise entre 2000 et 7500 $\mu\text{s/cm}$
- Groupe 3 : conductivité comprise entre 7500 et 15000 $\mu\text{s/cm}$
- Groupe 4 : conductivité supérieure à 15000 $\mu\text{s/cm}$

Tableau 3. Minéralisation des eaux thermales du Nord-Ouest algérien

Code de la source	Nom de la source	CE* _{25°C} ($\mu\text{s/cm}$)	Minéralisation (mg/l)	Classe de Minéralisation	Groupe
S1	Mkeberta	5740	4354,04	minéralisation élevée	Groupe 2
S2	Béni Yessaad	22200	18879,5	minéralisation très élevée	Groupe 4
S3	Mentila	50030	42547,11	minéralisation très élevée	Groupe 4
S4	Hamam Rabi	2045	1551,22	minéralisation élevée	Groupe 2
S5	Sid Aissa	3051	2314,31	minéralisation élevée	Groupe 2
S6	Chiguer	5038	3821,54	minéralisation élevée	Groupe 2
S7	Boughrara	692	495,44	minéralisation moyenne accentuée	Groupe 1
S8	Tahamamit	1073	813,91	minéralisation importante	Groupe 1
S9	Ain Hammam	809	613,66	minéralisation importante	Groupe 1
S10	Sidi Abdely	753	579,17	minéralisation importante	Groupe 1
S11	Nekhla (Bouhnifia)	2230	1691,55	minéralisation élevée	Groupe 2
S12	El Hamia (Bouhnifia)	2220	1683,96	minéralisation élevée	Groupe 1
S13	El hammat	3016	2287,7	minéralisation élevée	Groupe 2
S14	Ain Franin	6780	5142,92	minéralisation élevée	Groupe 2
S15	Hamam Bouhdjar	5450	4134,06	minéralisation élevée	Groupe 2
S16	Sidi Ayd	5130	3891,33	minéralisation élevée	Groupe 2

La majorité des échantillons prélevés présentent une minéralisation élevée. Les sources localisées à l'Est de la région d'étude sont plus minéralisées que celles plus à l'Ouest.

II.1.4. Potentiel hydrogène pH

C'est un paramètre qui permet de mesurer l'acidité ou l'alcalinité d'une eau. Il mesure l'activité des ions H^+ dans l'eau :

$$pH = -\text{Log} (H^+)$$

Le pH de l'eau conditionne les équilibres physico-chimiques, en particulier l'équilibre calco-carbonique et donc l'action de l'eau sur les carbonates. Une eau acide possède un pH bas, une eau trop basique possède un pH élevé ; et on considère une eau neutre celle dont le $pH=7,0$.

Le pH est influencé par plusieurs facteurs tels que la température, la présence de dioxyde de carbone (CO_2) et la vitesse de circulation des eaux à travers les conduits.

Les valeurs du pH mesurées sont légèrement acides à globalement proches de la neutralité : entre 6.31 comme valeur minimale à Sidi Ayd, et 7.9 comme valeur maximale à Hammam Boughrara.

II.2. Etude des paramètres chimiques

L'étude approfondie des paramètres chimiques des eaux souterraines est essentielle pour comprendre la qualité de l'eau et son impact sur les écosystèmes environnants. En effet, les eaux souterraines sont largement utilisées pour divers usages tels que l'approvisionnement en eau potable, l'irrigation ainsi que son emploi thérapeutique dans les bains. De ce fait, les analyses chimiques ont permis d'identifier les processus hydrochimiques qui régissent les systèmes aquifères hydrothermaux de la zone d'étude, donnant ainsi des informations précieuses pour la préservation et la gestion de ces ressources.

Les résultats des analyses chimiques ont été synthétisés dans un tableau récapitulatif ([Tableau 4](#)) présentant les valeurs minimales, moyennes, maximales et l'écart-type pour chaque paramètre,

Tableau. 4. Paramètres statistiques et variables descriptifs des sources thermales

Paramètre et élément	Unité	Min	Max	Moyenne	Ecart-type
CE	μS/cm	692	50300	5904,25	11988,61
pH	/	6,31	7,24	6,9	0,46
T	°C	30,6	69,1	40,1	11,7
Ca⁺²	mg/l	40	1103	326	342,4
Mg²⁺	mg/l	30,2	137,4	59,4	38,5
Na⁺	mg/l	20	19998	1843	4935,7
K⁺	mg/l	0,74	65,73	21,09	20,6
HCO₃	mg/l	146	768	368	181
F	mg/l	0,12	2,97	0,94	0,9
Cl⁻	mg/l	31	31361	2863	7735,6
SO₄²⁻	mg/l	12	3425	722	1056,3
Br⁻	ppb	0,09	4,89	1,15	1,271
Ba²⁺	ppb	14,21	732,965	146,9	231,51
Fe	ppb	1,847	140,03	21,31	45,166
Sr	ppb	144,758	17741,54	5034	5167,6
Al	ppb	1,72	36,71	5,66	9,2
Li⁺	ppb	1,75	1266,3	358,97	425,6
Rb	ppb	0,55	190,86	58,6	66,85

Le tableau 5 présente les résultats des analyses physico-chimiques des éléments majeurs, exprimés en mg/L, pour chaque source d'eau étudiée.

Tableau. 5. Résultats d'analyses physico-chimiques des sources thermales de l'Ouest algérien.

Code de la source	Nom de la Source	T °C	pH	CE _{25°C} (μS/cm)	Ca ⁺² (mg/L)	Mg ⁺² (mg/L)	Na ⁺ (mg/L)	K ⁺ (mg/L)	HCO ₃ ⁻ (mg/L)	Cl ⁻ (mg/L)	Br ⁻ (mg/L)	SO ₄ ²⁻ (mg/L)
S1	Mkeberta	31,	6,69	5740	627	137,4	468	17,05	146	722	3,06	1878
S2	Béni Yessaad	30,6	6,71	22200	913	68,4	4058		209	5969	1,51	2295
S3	Mentila	30,5	6,49	50030	1103	134	19998	65,73	634	31361	4,89	3425
S4	Hamam Rabi	45,8	6,77	2045	188	37,6	271	9,72	241	311	0,52	472
S5	Sid Aissa	45	7,24	3051	297	55,5	395	11,52	254	488	0,77	876
S6	Chiguer	31,7	7,21	5038	125	39	883	10,57	342,6	1415	1,16	181
S7	Bougrara	37,5	7,9	692	40	30,2	58	4,87	323,5	56	0,1	18
S8	Tahamamit	29,4	7,1	1073	53	40,3	69	3,88	241,1	108	0,34	33
S9	Ain Hammam	29,9	7,4	809	87	36,9	20	0,74	412,8	31	0,09	18
S10	Sidi Abdely	34,3	7,15	753	67	32,3	26	1,58	360,1	37	0,12	12
S11	Nekhla Bouhnifia	34,7	7,06	2230	76	54,8	237	20,29	336,2	319	0,62	167
S12	EL Hamia Bouhnifia	52	7,11	2220	65	30,7	249	24,15	368	317	0,49	83
S13	El Hamat	51	6,32	3016	203	46	378	47,7	768	483	0,37	124
S14	Ain Franin	33,5	6,35	6780	776	131,3	761	19,05	679	871	1,94	1863
S15	Hamam Bouhdjar	69,1	6,36	5450	233	41,5	822	51,48	178	1767	1,08	49
S16	Sidi Ayd	55,3	6,31	5130	326	35,2	799	46,85	400	1548	1,26	56

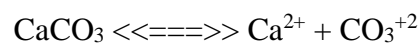
II.2.1. Répartition spatiale des éléments majeurs

La minéralisation désigne la quantité totale de sels dissous dans l'eau, mesurée en termes de concentration en ions (cations et anions). Les cations les plus courants dans l'eau souterraine sont le calcium (Ca^{2+}), le magnésium (Mg^{2+}), le sodium (Na^+) et le potassium (K^+), tandis que les anions les plus courants sont le chlorure (Cl^-), le bicarbonate (HCO_3^-), le sulfate (SO_4^{2-}) et le nitrate (NO_3^-). L'analyse chimique des échantillons prélevés montre une prédominance des ions Cl^- sur les ions HCO_3^- et SO_4^{2-} .

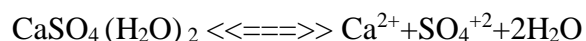
Par ailleurs, le Sodium est prédominant sur les cations Ca^{2+} et Mg^{2+} avec des teneurs variant de 20 mg/L (Ain Hemmam) à 19998 mg/L (Mentila).

II.2.1.1. Le Calcium

Le Calcium, généralement présent dans l'eau sous forme d'ion Ca^{2+} , est souvent associé à d'autres minéraux tels que le carbonate de calcium (CaCO_3) ou la dolomite ($\text{CaMg}(\text{CO}_3)_2$). Il peut avoir comme origines principales : la dissolution des carbonates suivant la formule :



ou des gypses :



En dehors des phénomènes de dissolution, le calcium peut avoir d'autres origines (réactions d'échange de base etc.) (Murad et al., 2011 ; Daniele et al., 2013)

La teneur minimale est enregistrée dans l'eau de Tahamamit avec une valeur de 53 mg/l, tandis que l'eau thermale de Mentila a la teneur maximale de 1103 mg/l (Fig. 22). La faible teneur en Ca^{2+} peut être due à l'échange de calcite (CaCO_3) et/ou de dolomite $\text{CaMg}(\text{CO}_3)_2$, avec l'eau dans l'aquifère, ou à l'échange de base avec le sodium, ce dernier pouvant provenir du contact eau-argile. Les teneurs élevées en Ca^{2+} peuvent être dues à la dissolution du gypse ou de l'anhydrite.

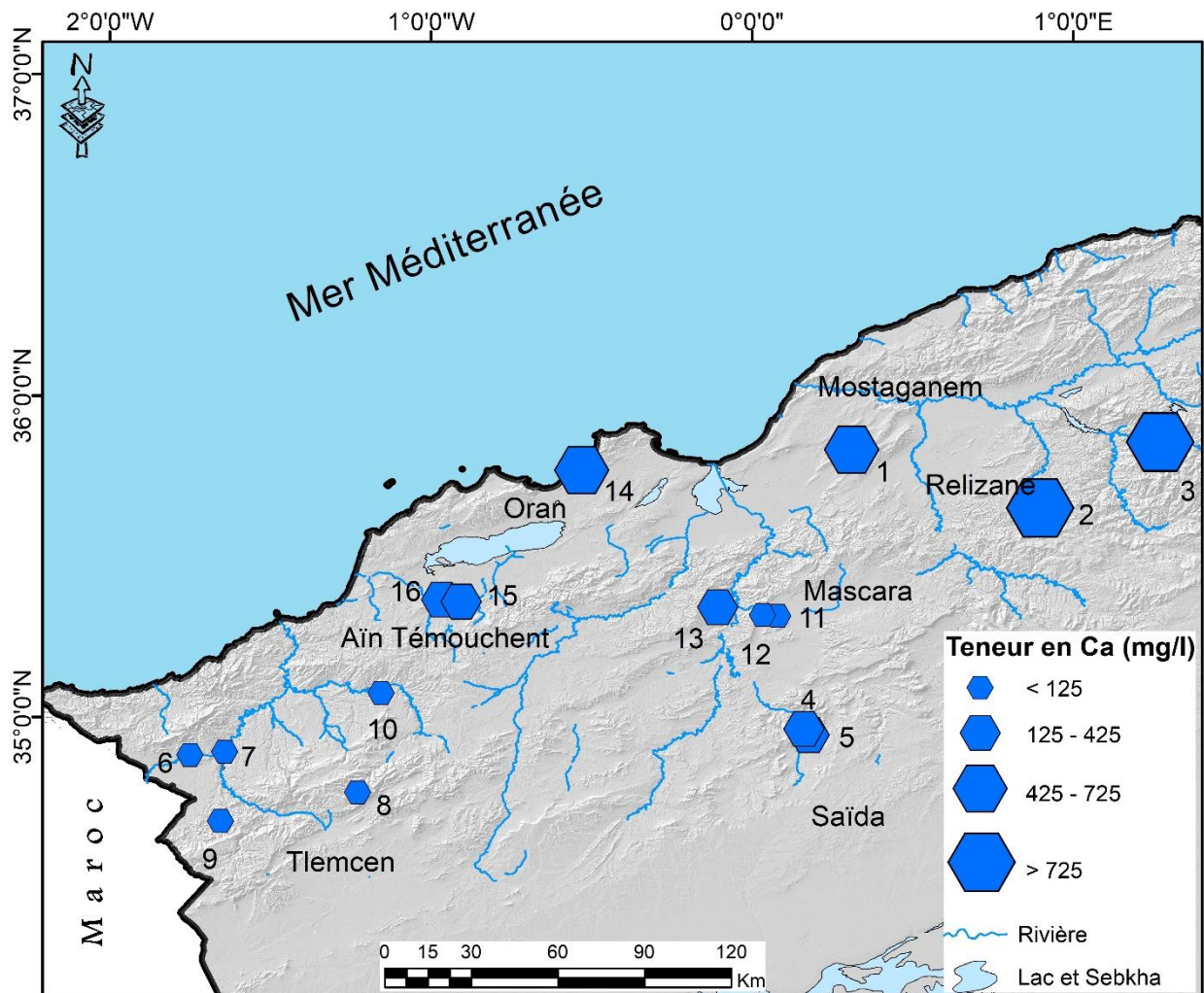


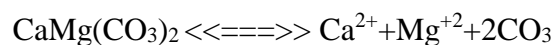
Fig. 22. Répartition des teneurs en Calcium (mg/L)

(1: Mkeberta; 2: Béni Yessaad; 3: Mentila; 4: Hammam Rabi; 5: Sidi Aissa; 6: Chiguer; 7: Boughrara; 8: Tahamamit; 9: Ain Hemmam; 10: Sidi Abdelly; 11: Bouhnifia Nekhla; 12: Bouhnifia N°3 Hamia; 13: El Hammat; 14: Ain Franin; 15: Hammam Bouhdjar; 16: Sidi Ayd)

II.2.1.2. Le Magnésium

Le Magnésium est également un minéral commun dans les eaux souterraines, généralement présent sous forme d'ion magnésium (Mg^{2+}). Comme le Calcium, la teneur en Magnésium dans les eaux souterraines peut varier considérablement en fonction de la géologie locale.

L'origine du Magnésium dans les eaux est la dissolution des carbonates riches en Magnésium, selon la réaction suivante (Montes-Hernandez et al., 2020) :



Les teneurs de Mg varient entre 137,4 mg/l (Source Mkeberta) et 30,2 mg/l (Hammam Boughrara).

II.2.1.3. Le Sodium

Dans les eaux souterraines, les teneurs en sodium peuvent varier considérablement en fonction de plusieurs facteurs, notamment la nature géologique des formations de la région. Les concentrations en Sodium sont souvent plus importantes dans les eaux des régions côtières, en raison de la proximité de la mer (Subba Rao et al., 2022 ; Ayari et al., 2023).

Les teneurs élevées en Sodium sont principalement liées à la dissolution rapide des formations évaporitiques (Halite), c'est le cas des sources de Mentila et Béni Yessaad (Fig. 23). Dans la région d'étude, les teneurs en Na^+ oscillent entre 20 mg/L (Ain Hemmam) et 19998 mg/L (Mentila).

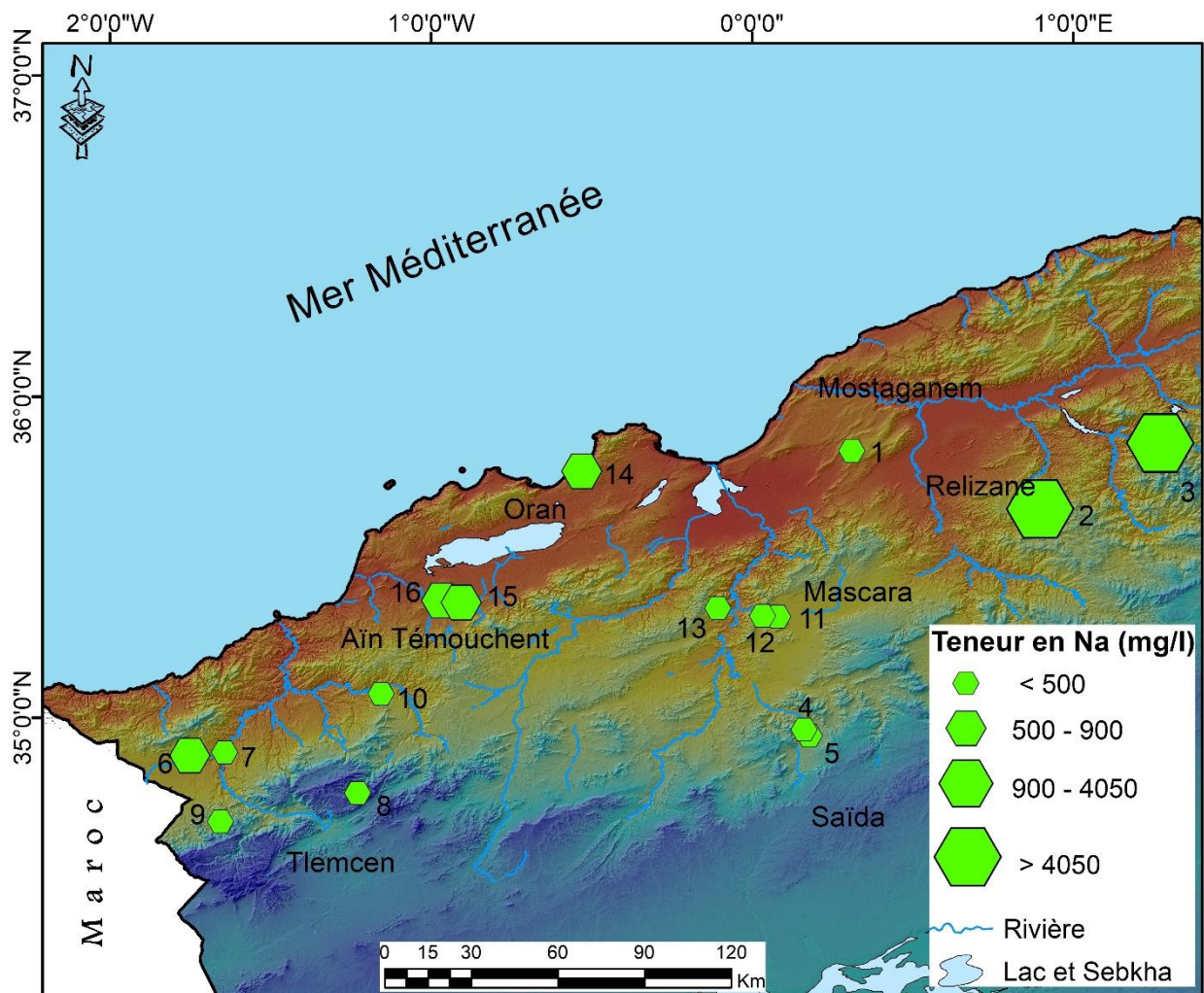


Fig. 23. Répartition des teneurs en Sodium en mg/L

(1: Mkeberta; 2: Béni Yessaad; 3: Mentila; 4: Hammam Rabi; 5: Sidi Aïssa; 6: Chiguer; 7: Boughrara; 8: Tahamamit; 9: Ain Hemmam; 10: Sidi Abdelly; 11: Bouhnifia Nekhla; 12: Bouhnifia N°3 Hamia; 13: El Hammat; 14: Ain Franin; 15: Hammam Bouhdjar; 16: Sidi Aïd)

II.2.1.4. Le Potassium

Le Potassium est un élément chimique présent dans les eaux souterraines, tout comme dans de nombreux minéraux et roches qui constituent les aquifères. Le potassium peut être présent sous forme de sels de Potassium, tels que le Chlorure de Potassium (sylvine : KCl) ou le Sulfate de Potassium (arcanite : K_2SO_4), qui peuvent être dissous dans l'eau souterraine (Pires and Moilton, 2012). Les processus géochimiques locaux peuvent également influencer la concentration de Potassium dans les eaux souterraines (Stumm and Morgan, 1996). Par exemple, les processus d'altération des roches et de la matière organique peuvent libérer du Potassium dans les eaux souterraines (Gambardella et al., 2005). Généralement, le Potassium provient de l'altération des argiles potassiques (De Simone et al., 1997). Dans les eaux thermales étudiées, sa teneur minimale est de 0,74 mg/L (Ain El Hammam) et sa valeur maximale de 65,73 mg/L (Mentila). La dissolution des formations évaporitiques est souvent la principale source de l'apport en K^+ dans l'eau.

II.2.1.5. Les Chlorures

Les chlorures (Cl^-) peuvent provenir de nombreuses sources naturelles, telles que l'altération des roches, l'érosion des sols, les précipitations, les écoulements de rivières et les sources marines. Les zones côtières et les régions situées à proximité de sources d'eau salée, telles que les estuaires et les deltas, peuvent avoir des niveaux élevés de chlorures dans les eaux souterraines en raison de l'infiltration d'eau salée dans les aquifères (Telahigue et al., 2018 ; Ayari et al., 2023).

Le Cl^- est l'élément prédominant dans les eaux thermales du Nord-Ouest d'Algérie, avec des concentrations parfois extrêmement élevées, allant de 31 mg/L (Ain Hemmam) à 31361 mg/L (Mentila), souvent liées à la présence d'évaporites (Fig. 24). Généralement, les eaux riches en chlorures sont riches en sodium, ces deux éléments sont souvent très bien corrélés dans les eaux souterraines.

Dans les eaux thermales étudiées, les teneurs en chlorure sont plus importantes que les teneurs en sodium, à l'exception de la source de Mentila.

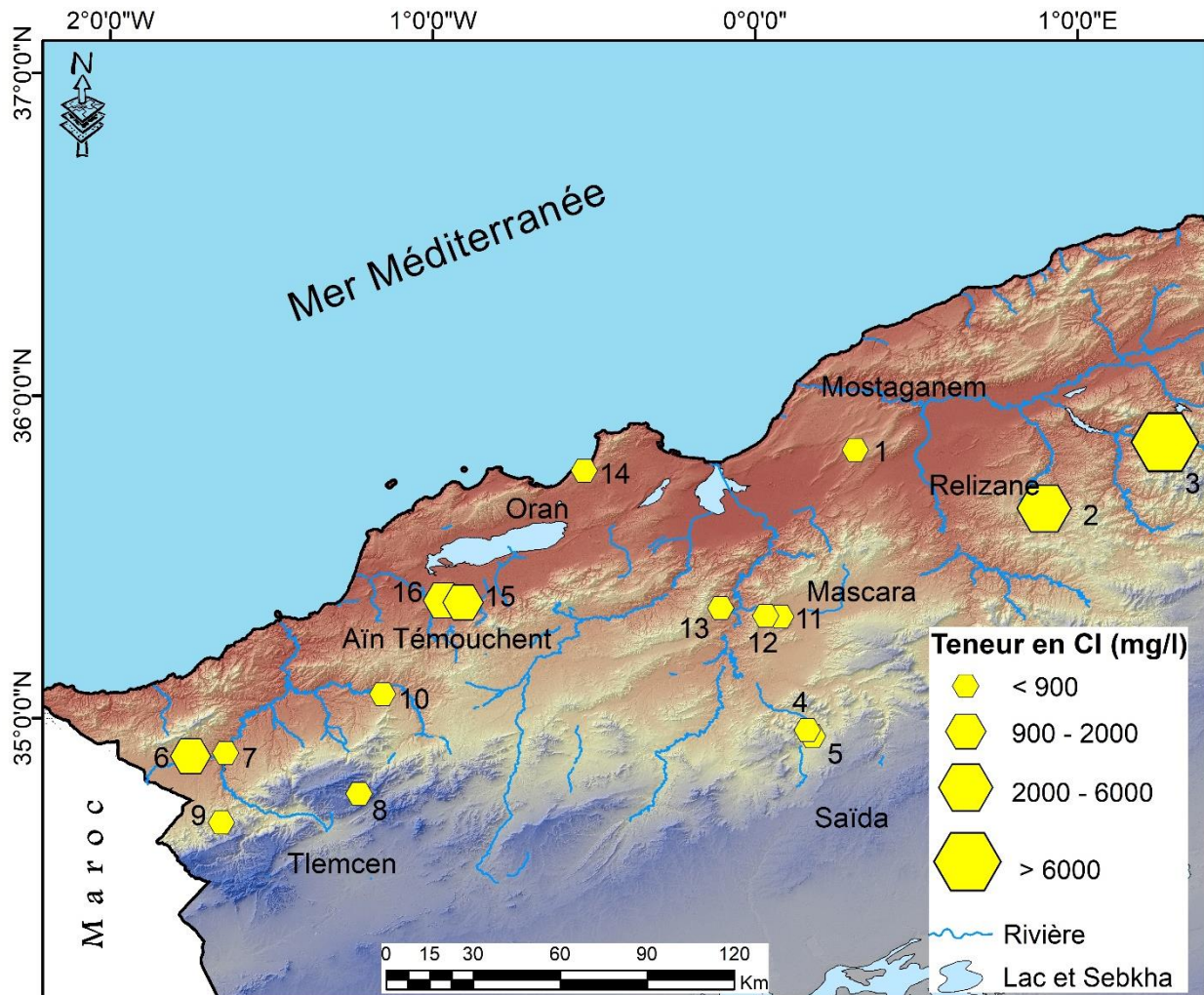


Fig. 24. Répartition des teneurs en Chlorure en mg/L

(1: Mkeberta; 2: Béni Yessaad; 3: Mentila; 4: Hammam Rabi; 5: Sidi Aissa; 6: Chiguer; 7: Boughrara; 8: Tahamamit; 9: Ain Hemmam; 10: Sidi Abdely; 11: Bouhnifia Nekhla; 12: Bouhnifia N°3 Hamia; 13: El Hammat; 14: Ain Franin; 15: Hammam Bouhdjar; 16: Sidi Ayd)

II.2.1.6. Les Sulfates

Les eaux souterraines provenant de formations géologiques riches en Sulfates, comme les gypses ou l'anhydrite, ont souvent des teneurs élevées en SO_4^{2-} . Ces teneurs proviennent généralement de sources naturelles telles que les minéraux sulfatés (par exemple le gypse), l'oxydation des minéraux sulfurés (par exemple la pyrite), les précipitations et l'activité volcanique (Li et al., 2015 ; Galhardi et Bonotto, 2016 ; Fernando et al., 2018). L'eau chaude peut alors dissoudre des minéraux riches en Sulfates, tels que la Barytine ou la Célestine, qui sont présents dans les roches environnantes.

Dans les sources thermales étudiées, la teneur minimale de sulfate est de 12 mg/L (Hammam Sidi Abdely) tandis que la teneur maximale est 3435 mg/L (Mentila) (Fig. 25). Les teneurs élevées en

Sulfate pour les sources Mentila, Béni Yessaad et Ain Franin sont probablement dues à la dissolution du gypse selon la réaction suivante :

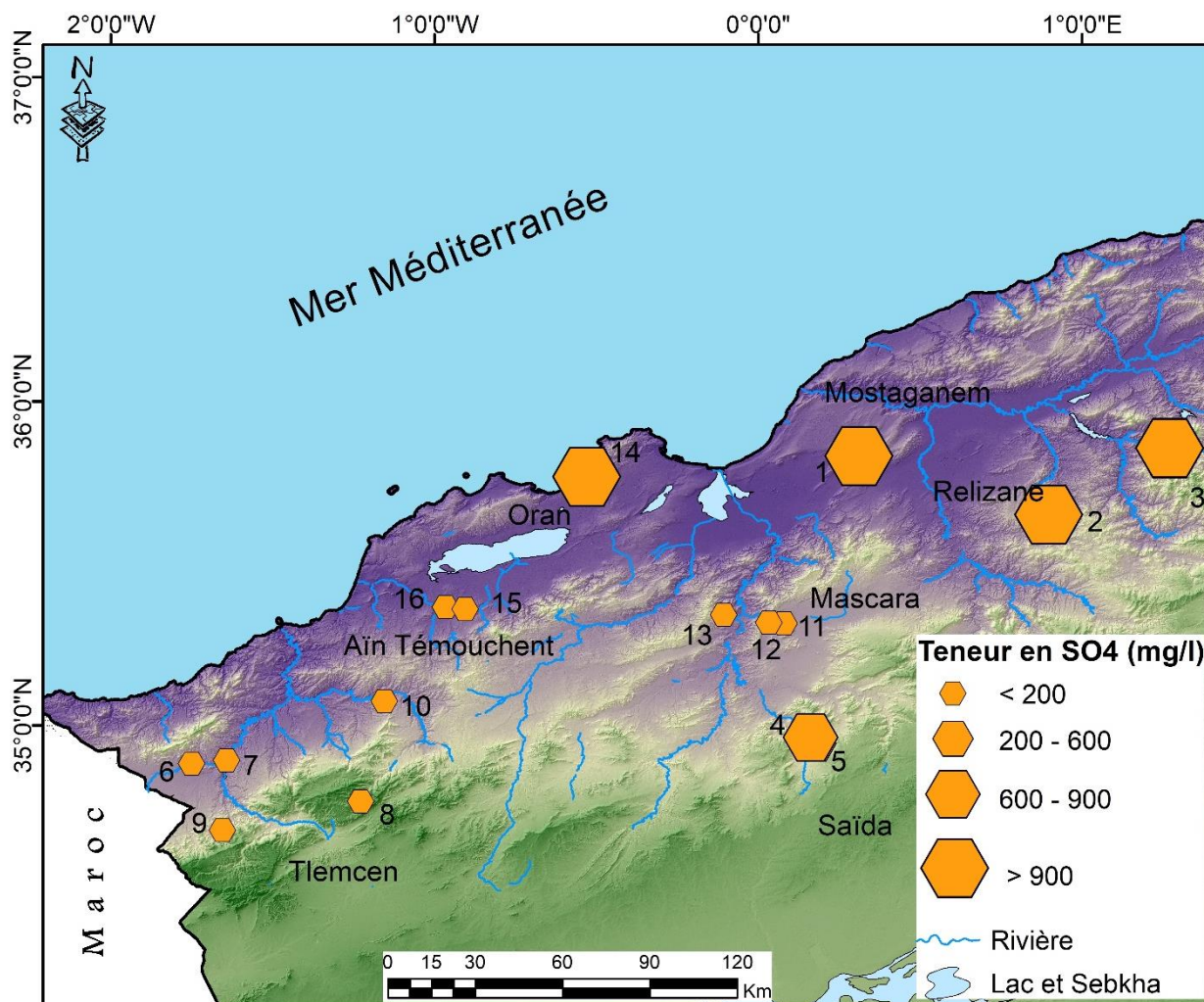
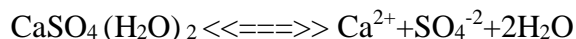


Fig. 25. Répartition des teneurs en Sulfate en mg/L

(1: Mkeberta; 2: Béni Yessaad; 3: Mentila; 4: Hammam Rabi; 5: Sidi Aïssa; 6: Chiguer; 7: Boughrara; 8: Tahamamit; 9: Ain Hemmam; 10: Sidi Abdelly; 11: Bouhnia Nekhla; 12: Bouhnia N°3 Hamia; 13: El Hammat; 14: Ain Franin; 15: Hammam Bouhdjar; 16: Sidi Aïd)

II.2.1.7. Les Bicarbonates

Les teneurs en Bicarbonates présentées dans les eaux thermales varient de 178 mg/L (Source Hammam Bouhdjar) à 679 mg/L (Source Ain Franin). Les Bicarbonates résultent de la dissolution des carbonates, dont les calcaires qui représentent les principales formations des réservoirs géothermaux du nord-ouest algérien, notamment dans le Bassin de la Tafna, les monts de Tlemcen et le domaine Tlemcenien.

II.2.2. Les éléments traces

Les éléments traces dans les eaux thermales peuvent inclure une grande variété d'éléments, tels que le lithium, le strontium, le sélénium, le fer, le manganèse, le zinc, le cuivre, le plomb, le mercure, le cadmium et d'autres métaux lourds. Ces éléments se trouvent dans les roches et les minéraux environnants et sont dissous dans l'eau lorsqu'elle passe à travers les formations géologiques. La connaissance des teneurs en éléments traces est nécessaire pour le bon fonctionnement de l'organisme humain, car des quantités élevées ont de graves effets sur la santé en raison de leur persistance et de leur toxicité (Patil and Patil, 2010; Mas-Pla et al., 2016). La concentration et la répartition des éléments traces dans les eaux thermales dépendent de nombreux facteurs, tels que le type d'aquifère, la température, la pression, la qualité de l'eau d'infiltration, l'altération des minéraux dans les aquifères, les conditions d'oxydation-réduction, le temps de séjour et les processus géochimiques qui se produisent dans l'aquifère (Magesh et al., 2017; Brindha et al., 2020). Souvent, les eaux géothermales présentent des teneurs faibles en éléments mineurs tels que la silice, phosphate, strontium, fer et baryum. Dans certains cas dans le monde, des teneurs élevées en éléments trace ont été signalées dans les eaux géothermales. La concentration d'As dans les eaux thermales du Mexique atteint 49,6 mg/L, mais les concentrations les plus élevées mesurées atteignent jusqu'à 73,6 mg/L (Birkle et al., 2010). Dans le célèbre site géothermal du monde, Yellowstone park, la concentration en Arsenic signalée est de 1 mg/L (Ball et al., 1998).

Outre les éléments chimiques (majeurs et mineurs), les éléments traces dans les eaux souterraines peuvent donner des indices importants sur la nature des roches en contact avec les eaux lors de la circulation souterraine. Ils peuvent fournir des informations sur les divers processus affectant le chimisme des eaux géothermales. Les métaux tels que Al, As, Pb et Zn, peuvent être nocifs pour l'environnement et à l'utilisation thérapeutique de ces eaux par les stations hydrothermales. L'étude des éléments traces est intéressante pour comprendre les impacts environnementaux possibles de l'exploitation des systèmes géothermaux.

II.2.2.1. Teneurs en éléments traces dans les eaux thermales du Nord-ouest algérien

Les teneurs des différents éléments traces mesurées dans les eaux thermales du nord-ouest algérien sont variables d'une émergence à une autre et sont généralement faibles à l'exception du Strontium qui présente des teneurs relativement élevées par rapport aux autres éléments.

Le Strontium est l'un des métaux alcalino-terreux. Dans la nature, il se trouve le plus souvent sous forme de Strontianite (SrCO_3) et de Célestite SrSO_4 , cette dernière est un bon indicateur des formations évaporitiques et qui permet de déterminer l'origine des sulfates (Edmunds, W.M,

1995). La concentration maximale du Sr est de 17741,54 (ppb) équivalents à 17,74 (mg /L) (S2, source Béni Yessaad) tandis que sa concentration moyenne générale est 5034,22 ppb. Toutes les concentrations des éléments traces dans les échantillons d'eau prélevés dans les sources thermales sont indiquées dans le tableau 6 ci-dessous.

Tableau. 6. les concentrations des éléments traces dans les eaux thermales en ppb (ug/L)

ID	Source	Ba ²⁺	Fe	Sr ²⁺	Al ³⁺	Li ⁺	Rb ⁺	As ³⁻
S1	Mkeberta	22,842	6,382	12663	3,421	163,252	17,174	10,306
S2	Béni Yessaad	30,343	2,593	17741,54	nd	75,127	4,683	0,184
S3	Mentila	15,034	21,288	9217,288	nd	860,681	89,528	0,011
S4	Hammam Rabi	37,81	3,46	3168,313	1,747	111,361	22,698	25,753
S5	Sidi Aissa	26,76	2,49	5241,389	1,749	165,518	36,04	23,33
S6	Chiguer	67,284	6,434	2016,176	9,994	155,376	34,291	6,019
S7	Bouhrara	67,517	3,002	267,636	5,365	24,427	7,138	0,773
S8	Tahamamit	91,529	2,671	282,817	2,406	8,657	2,805	1,091
S9	Ain Hemmam	14,215	1,847	144,758	1,725	1,752	0,554	0,083
S10	Sidi Abdelly	69,958	2,227	179,727	3,109	7,14	2,683	0,568
S11	Bouhnifia Nekhla	117,874	5,082	2076,006	36,714	308,474	57,8	0,036
S12	Bouhnifia El Hamia	165,638	2,033	1765,834	1,809	416,8	82,612	18,319
S13	El Hammat	146,459	132,665	3388,26	4,472	712,726	166,35	42,996
S14	Ain Franin	21,471	140,03	10940,58	2,383	239,882	34,948	9,447
S15	Hammam Bouhdjar	732,965	2,782	5772,186	2,596	1266,3	190,86	8,494
S16	Sidi Ayd	722,767	5,978	5682,037	1,827	1226,07	187,3	1,532

Les résultats des éléments traces Ba²⁺, Fe, Sr²⁺, Al³⁺, Li⁺ et Rb⁺ pour toutes les sources thermales sont représentées sur la Figure 26.

Sur cette figure, la concentration en Sr est clairement dominante dans tous les groupes d'eau thermale. Les éléments sont classés en fonction de leurs concentrations les plus élevées en : Sr²⁺ > Li⁺ > Ba²⁺ > Rb⁺ > Fe > Al³⁺ > As³⁻.

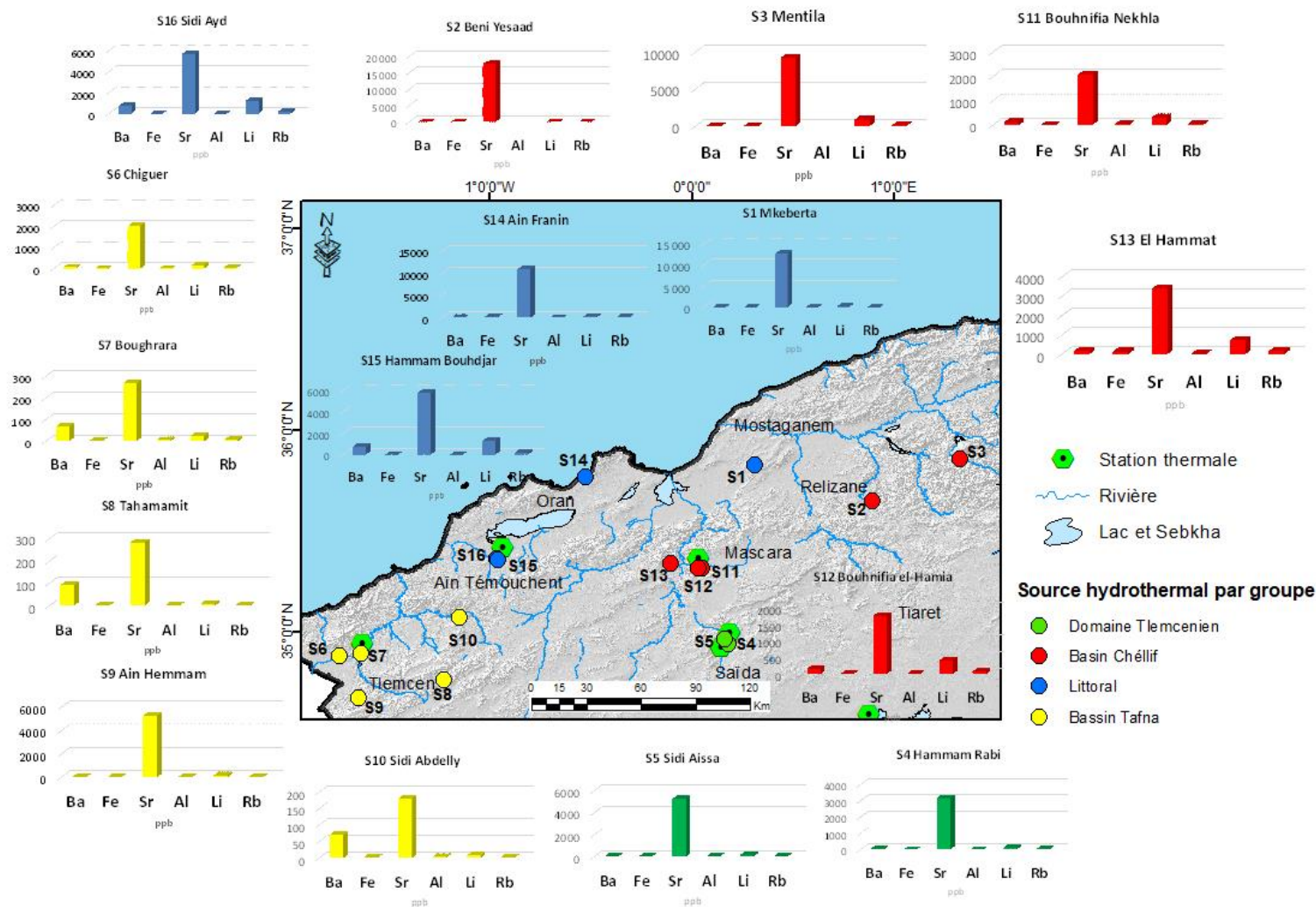


Fig. 26. Teneurs en éléments traces des eaux thermales du Nord-Ouest algérien

(1: Mkeberta; 2: Béni Yessaad; 3: Mentila; 4: Hammam Rabi; 5: Sidi Aissa; 6: Chiguer; 7: Boughrara; 8: Tahamamit; 9: Ain Hemmam; 10: Sidi Abdelly; 11: Bouhnifia Nekhla; 12: Bouhnifia N°3 Hamia; 13: El Hammat; 14: Ain Franin; 15: Hammam Bouhdjar; 16: Sidi Ayd)

II.3. Faciès chimique des eaux

La détermination du faciès chimique de l'eau thermale peut fournir des informations importantes sur l'origine de l'eau, ainsi que sur les processus géologiques et géochimiques qui ont affecté sa composition.

L'étude des faciès chimiques des eaux a permis de classer nos eaux thermales en familles, en fonction de l'anion dominant. Trois principaux faciès ont été déterminés (Fig. 27), ce sont : les eaux sulfatées, chlorurées et bicarbonatées.

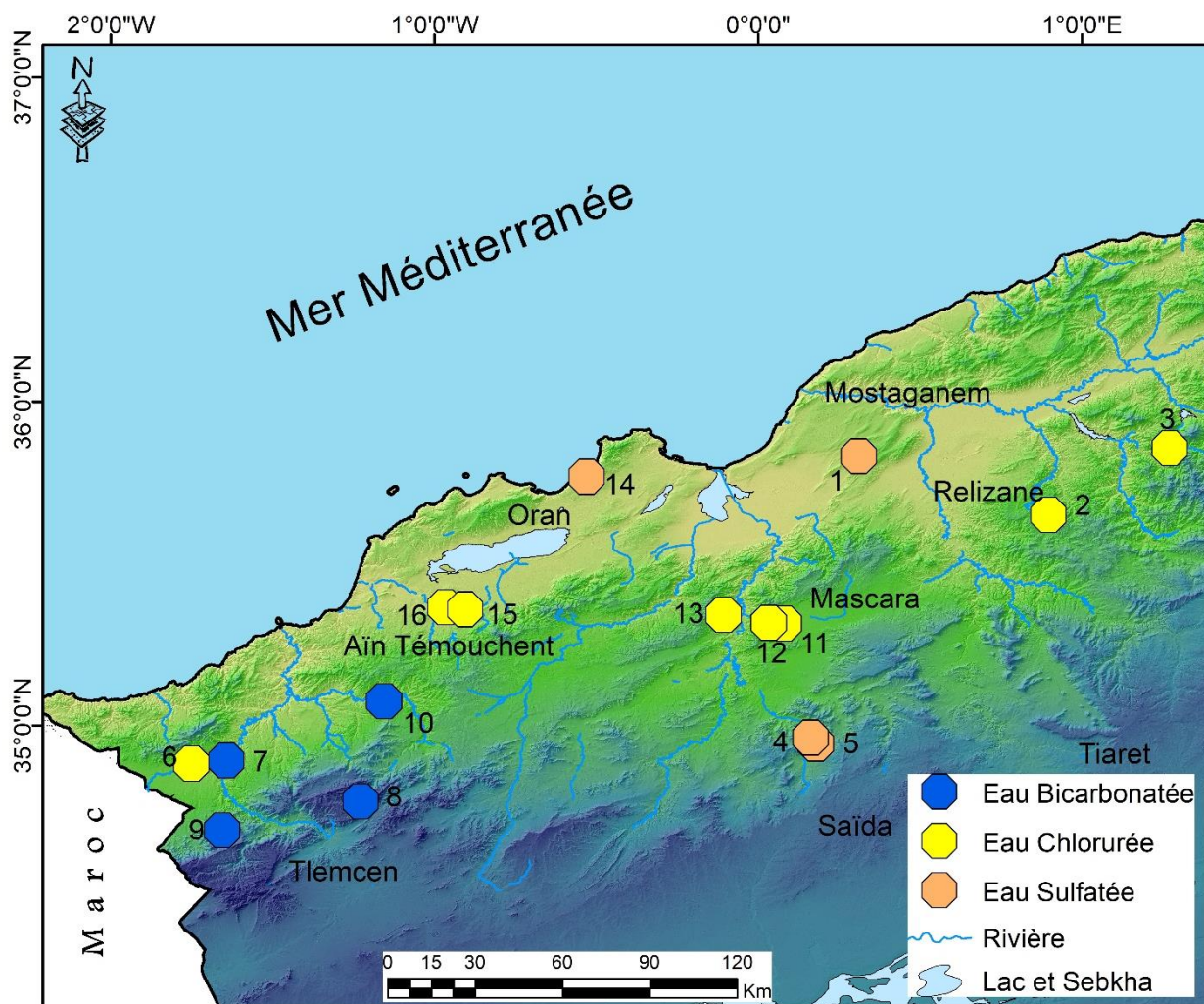


Fig. 27. Carte de répartition des faciès chimiques des eaux thermales étudiées

(1: Mkeberta; 2: Béni Yessaad; 3: Mentila; 4: Hammam Rabi; 5: Sidi Aissa; 6: Chiguer; 7: Boughrara; 8: Tahamamit; 9: Aïn Hemmam; 10: Sidi Abdelly; 11: Bouhniſia Nekhla; 12: Bouhniſia N°3 Hamia; 13: El Hammat; 14: Aïn Franin; 15: Hammam Bouhdjar; 16: Sidi Aïd)

III. Classification hydrochimique des eaux souterraines

Dans cette étude, des représentations graphiques sous forme de diagrammes de Stabler, de Piper et Ternaire, ont été adoptées pour visualiser les résultats des échantillons d'eau thermale de l'Ouest

algérien. Ces diagrammes permettent de représenter la composition chimique de l'eau en terme de cations et d'anions. L'objectif de l'utilisation de ces graphiques est de donner une représentation claire et concise des données, ce qui facilitera la compréhension des caractéristiques chimiques des eaux thermales étudiées, et des processus géochimiques mis en œuvre dans les systèmes hydrothermaux de l'ouest algérien.

III.1. Diagramme de STABLER

La classification chimique de STABLER (Fig. 28), montre une hétérogénéité chimique entre les différentes sources, où les cations prédominants sont le Calcium et le Sodium. Quatre familles ont ainsi été identifiées, selon cette classification (Fig. 28a, 28b, 28c et 28d).

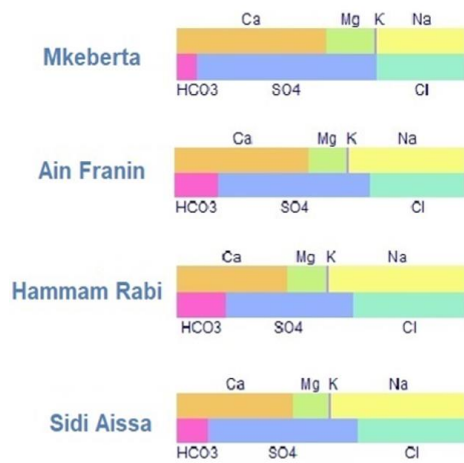


Fig. 28a : Sulfatées calciques et sodiques

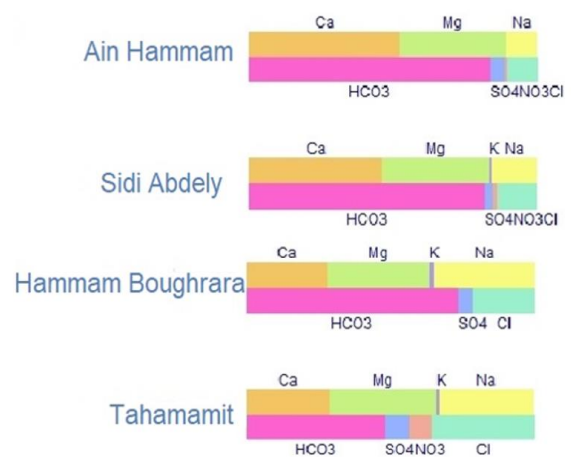


Fig. 28b : Bicarbonatées calciques et magnésiennes

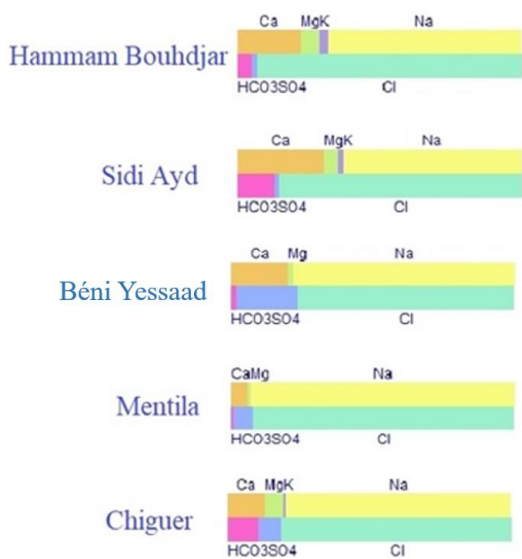


Fig. 28c Hyper chlorurées sodiques

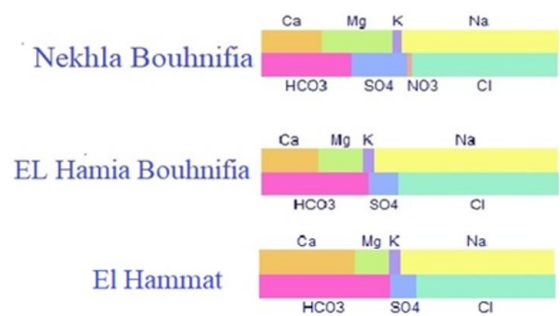


Fig. 28d : Chlorurées sodiques

Fig. 28. Diagramme de STABLER des eaux thermales de la région d'étude

III.2. Diagramme de PIPER et diagramme ternaire Cl^- - SO_4^{2-} - HCO_3^-

Les concentrations en cations et en anions ont été reportées sur le diagramme de Piper (Fig. 29 : Piper, 1944) et le diagramme ternaire Cl^- - SO_4^{2-} - HCO_3^- (Fig. 30) pour chaque groupe de sources thermales. Le Diagramme de PIPER met en évidence le fort contraste de minéralisation et de faciès chimiques des eaux thermales.

Selon Piper, on distingue trois grandes familles :

- Eaux chlorurées sodiques et potassiques (Cl^- - Na^+ - K^+) : sources du bassin de Chélif et deux sources du Littoral
- Eaux bicarbonatées calciques, et magnésiennes (HCO_3^- - Ca^{2+} - Mg^{2+}) : sources du Bassin de la Tafna (région de Tlemcen).
- Eaux sulfatées calciques (SO_4^{2-} - Ca^{2+}) : sources du littoral Oranais, sources du domaine Tlemcenien.

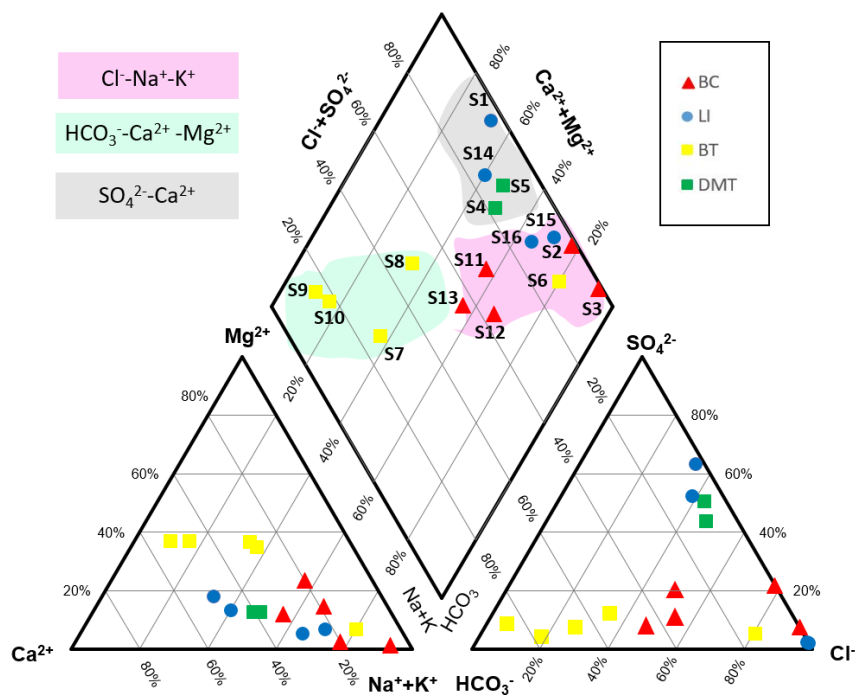


Fig. 29. Diagramme de PIPER

(1: Mkeberta; 2: Béni Yessaad; 3: Mentila; 4: Hammam Rabi; 5: Sidi Aissa; 6: Chiguer; 7: Boughrara; 8: Tahamamit; 9: Ain Hemmam; 10: Sidi Abdelly; 11: Bouhnifia Nekhla; 12: Bouhnifia N°3 Hamia; 13: El Hammat; 14: Ain Franin; 15: Hammam Bouhdjar; 16: Sidi Ayd)

Le diagramme ternaire Cl^- , SO_4^{2-} , et HCO_3^- (Giggenbach, 1991), est utilisé pour classer et identifier l'origine des eaux thermales. Les résultats de cette analyse confirment la prédominance du faciès chloruré dans la composition chimique des eaux étudiées, et mettent en évidence les trois principaux faciès chimiques des eaux : chlorurées, sulfatées et bicarbonatées (Fig. 30).

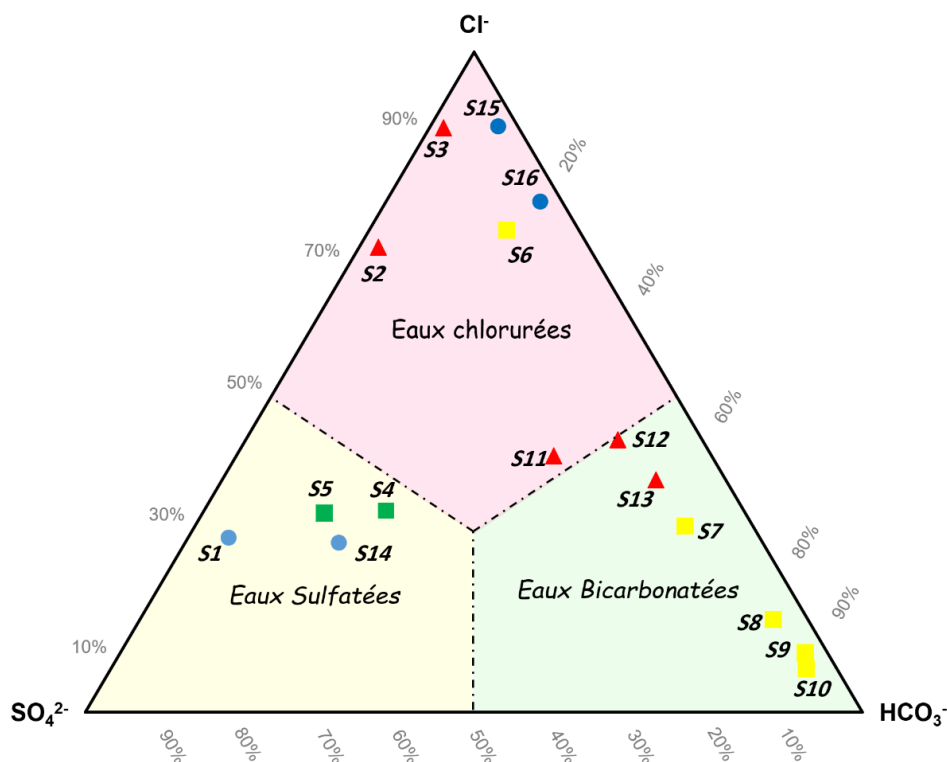


Fig. 30. Diagramme ternaire Cl-SO₄-HCO₃

(1: Mkeberta; 2: Béni Yessaad; 3: Mentila; 4: Hammam Rabi; 5: Sidi Aissa; 6: Chiguer; 7: Boughrara; 8: Tahamamit; 9: Ain Hemmam; 10: Sidi Abdelly; 11: Bouhnifia Nekhla; 12: Bouhnifia N°3 Hamia; 13: El Hammat; 14: Ain Franin; 15: Hammam Bouhdjar; 16: Sidi Ayd)

IV. Processus d'acquisition de la minéralité des eaux

IV.1. Analyses statistiques multivariées

Dans notre étude sur les eaux thermales de l'ouest algérien, nous avons utilisé des méthodes multivariées pour mieux visualiser et comprendre les variations de leur chimisme. Ces méthodes sont extrêmement utiles car elles permettent de manipuler un grand nombre de variables simultanément. Toutefois, leur complexité tant au niveau théorique que méthodologique peut limiter leur utilisation. Malgré ces limitations, ces méthodes ont montré leur efficacité dans de nombreux cas d'étude, impliquant des problèmes hydrogéologiques complexes et des interactions multiples entre de nombreuses variables (Davis, 2002). Les méthodes multivariées offrent ainsi un outil précieux pour mieux comprendre ces interactions.

IV.1.1. Matrice de corrélation

Les coefficients de corrélation (Fig. 31) les plus significants sont mentionnés en couleur rouge et les faibles corrélations sont en bleu. On note :

- Une très forte corrélation entre la conductivité et le Ca⁺², Mg²⁺, Na⁺, Cl⁻, et SO₄²⁻ respectivement.

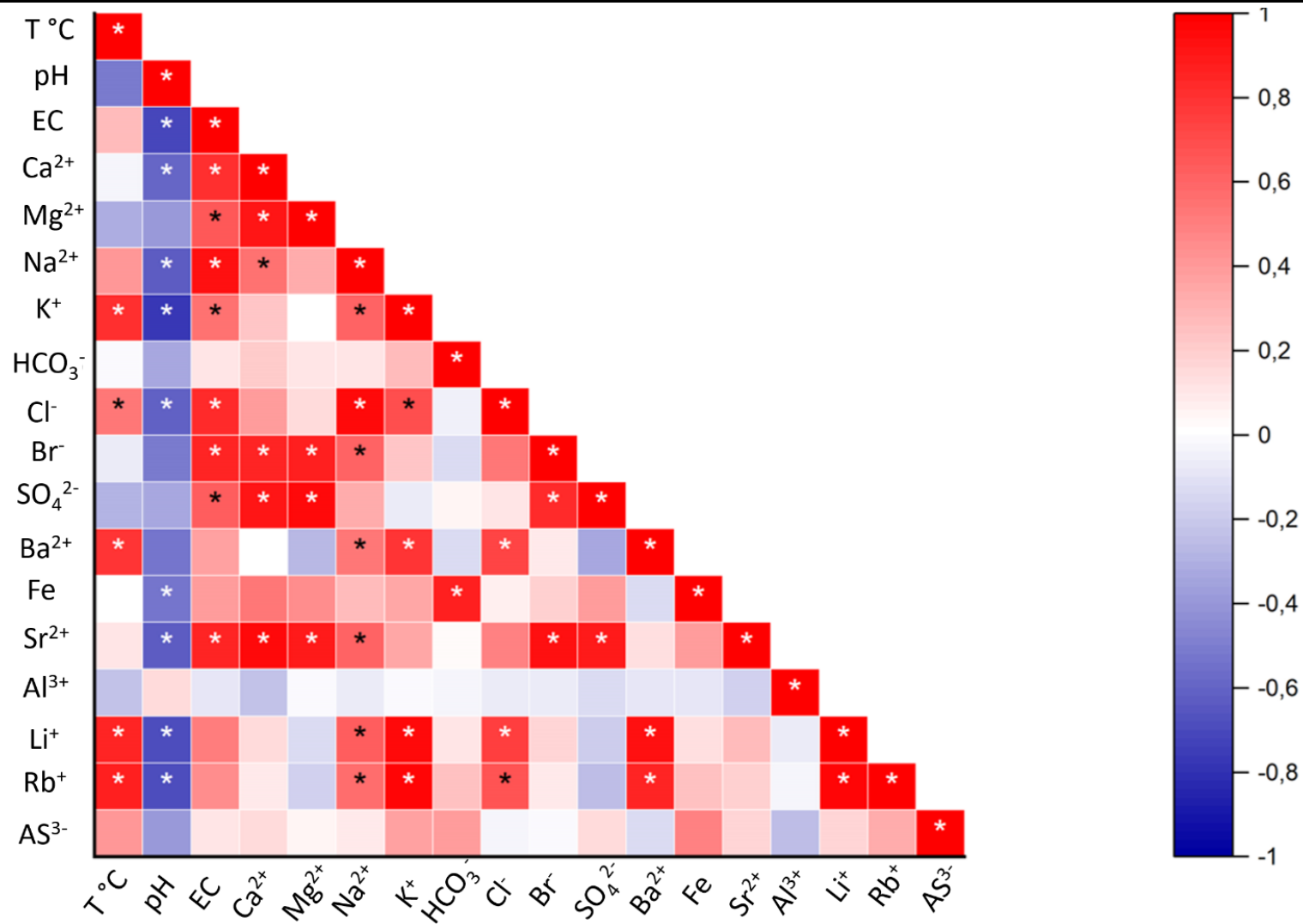


Fig. 31. Matrice de corrélation des éléments chimiques analysés.

- Une forte corrélation entre le Ca^{+2} et le SO_4^{2-} , Mg^{2+} , Na^+ , Br^- , et Sr^{2+} . La corrélation entre le SO_4^{2-} et Sr peut indiquer la présence de strontianite et celestite.
- Une forte corrélation entre Ba^{2+} , Rb^+ et Li^+ indiquant une origine commune de ces éléments dans les aquifères hydrothermaux.

IV.1.2. Application de la méthode de classification hiérarchique (Classification Ascendante Hiérarchique)

La méthode de l'analyse par regroupement hiérarchique (CAH) permet de classer les éléments ou les entités en groupes. Cette approche peut être utilisée pour regrouper les données physico-chimiques de l'eau en fonction de leur similarité. Plusieurs auteurs ont utilisé cette méthode d'analyse des données des eaux souterraines, tels que Meng et Maynard (2001), Alberto et al. (2001), Belkhiri et al. (2012), Bouaicha F. et al. (2017) et Torres-Martínez et al. (2020).

Il existe plusieurs types de classification selon la méthode utilisée. Sharma suggère que la procédure de classification de Ward est la meilleure (Sharma, 1996), car elle produit une plus grande proportion d'observations classées correctes que la plupart des autres méthodes. Par conséquent, la procédure de clustering de Ward (Ward, 1963) a été adoptée dans cette étude.

Les 8 variables hydrochimiques utilisées dans cette analyse sont : CE, Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^+ , K^+ , Cl^- , SO_4^{2-} , et HCO_3^- .

Le résultat de l'application de cette méthode se présente sous forme de dendrogramme de regroupement hiérarchique (Fig. 32). Quatre groupes préliminaires se distinguent, en fonction de leurs similarités hydrochimiques. La conductivité électrique semble être un facteur distinctif majeur avec des concentrations croissantes de tous les principaux ions :

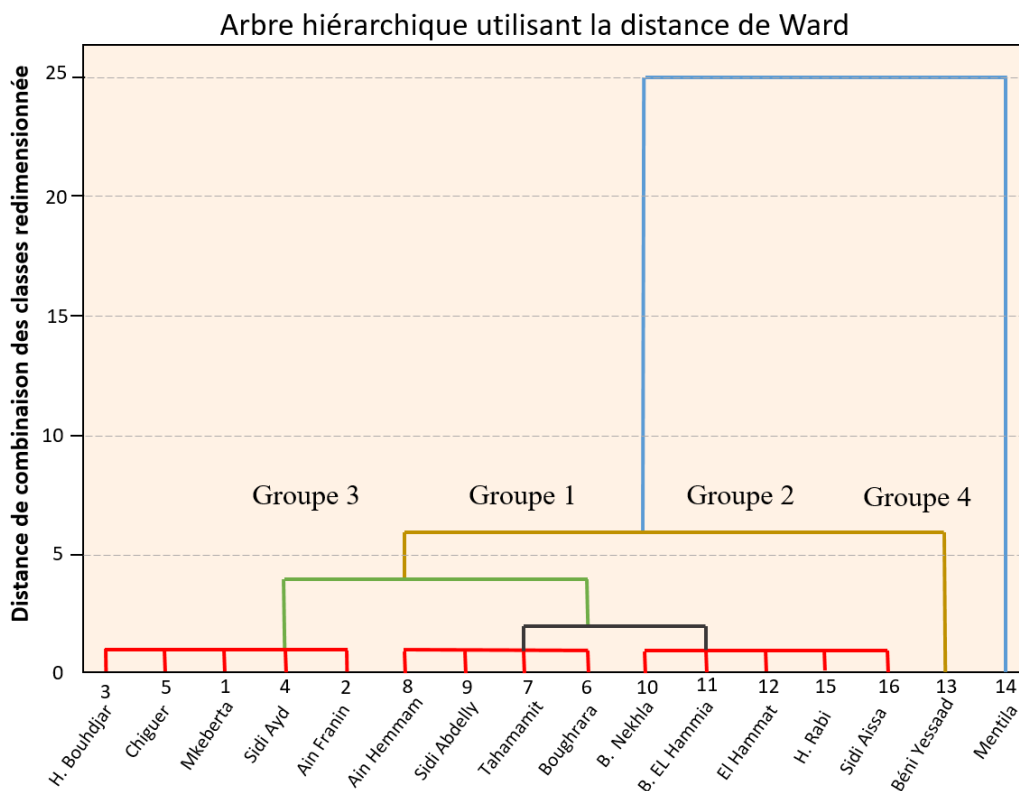


Fig. 32. Dendrogramme de regroupement hiérarchique, Classification ascendante (Q-mode)

Le groupe 1 inclut quatre échantillons, avec une conductivité électrique qui varie entre 692 et 1073 $\mu\text{S/cm}$, une minéralisation moyenne de 500,43 mg/L et un faciès chimique du type : $\text{HCO}_3^- - \text{Ca}^{2+} - \text{Mg}^{2+}$. Ce sont les eaux des sources les moins minéralisées.

Le groupe 2 comprend cinq échantillons d'eau présentant une conductivité électrique variant entre 2045 et 3051 $\mu\text{S/cm}$, avec une minéralisation moyenne de 1897,7 mg/L, et un faciès chimique du type : $\text{Cl}^- - \text{Na}^+$ et $\text{SO}_4^{2-} - \text{Ca}^{2+}$.

Le groupe 3 est composé de cinq échantillons d'eau. La conductivité électrique varie de 5038 à 5740 $\mu\text{S/cm}$, avec une minéralisation moyenne de 4268,7 mg/L. Les ions sodium (Na^+) et chlorures (Cl^-) prédominent. Ce sont des eaux fortement minéralisées, comparées aux groupes 1 et 2.

Le groupe 4 se distingue par des concentrations très élevées en ions chlorure (Cl^-) et sodium (Na^+), avec une minéralisation excessivement élevée (CE atteint 50030 $\mu\text{S/cm}$ à la source de Mentila). Ces eaux sont caractérisées par une forte salinité et la présence de sulfure d'hydrogène (H_2S).

IV.2. Diagrammes binaires

La minéralisation des eaux thermales est un processus complexe qui se produit lorsque de l'eau souterraine chaude et riche en minéraux remonte à la surface. L'utilisation des diagrammes binaires est un outil qui permet d'expliquer également l'hydrochimie des eaux étudiées.

Comprendre l'origine des fluides hydrothermaux est une étape essentielle pour déchiffrer les processus souterrains potentiels (McCarthy et al., 2005). Ainsi, de nombreuses études ont utilisé des diagrammes binaires pour comprendre ces processus dans les aquifères hydrothermaux (Bouchaou et al., 2017 ; Chenaker ; 2018 ; Yan et al., 2019 ; Zhang et al., 2019

Dans cette étude, les sources thermales ont été regroupées par domaine, au nombre de quatre, en fonction de leur situation géologique et géographique. Pour rappel,

- Le premier regroupe les eaux liées au Bassin de la Tafna (BT) dont les sources thermales émergent à travers les formations du Miocène au Nord et le Jurassique au Sud (Monts de Tlemcen), essentiellement dolomitique dans la région de Tlemcen.
- Le deuxième regroupe les eaux liées au littoral oranais (LI), qui constitue la partie nord-ouest du bassin de Chélif. Les sources thermales affleurent à travers les terrains néogènes recouverts par des sables du Quaternaire, dans la région d'Ain Temouchent, Oran et Mostaganem.
- Le troisième regroupe les eaux du Bassin du Bas Chélif (BC), qui émergent à travers les formations du Mio-Pliocène, dans les régions de Mascara et Relizane.
- Le quatrième regroupe les eaux du domaine Tlemcenien (DMT), où le Jurassique et le Crétacé sont prédominants, notamment dans la région de Saïda.

IV.2.1. Na⁺ versus Cl⁻

Le diagramme Na⁺-Cl⁻ montre un alignement des points autour de la droite de dissolution de l'Halite (Na⁺/Cl⁻=1) (Fig. 33), traduisant une très bonne corrélation entre ces deux éléments (R=0,99) et par conséquent, un enrichissement en Sodium et en Chlorure des eaux (cas des sources Mkeberta, Béni Yessaad, Mentila, Bouhdjar, EL Hamia, El Hammat, Bouhdjar et Sidi Aïd). Le Chlorure dans les eaux souterraines provient de la dissolution des intercalations d'Halite dans les sédiments à grains fins (Tarki et al. 2012 ; Mouassa et al., 2020). Les évaporites renferment des halites qui sont probablement la source de Na⁺ et Cl⁻ dissous (Blasco et al., 2019 ; Benamar et al., 2023). Néanmoins, un enrichissement en Na provient également des réactions d'échange de base avec les argiles, ce phénomène est très observable lors de la circulation des eaux saumâtres dans les bassins sédimentaires (In Bouaïcha, 2019).

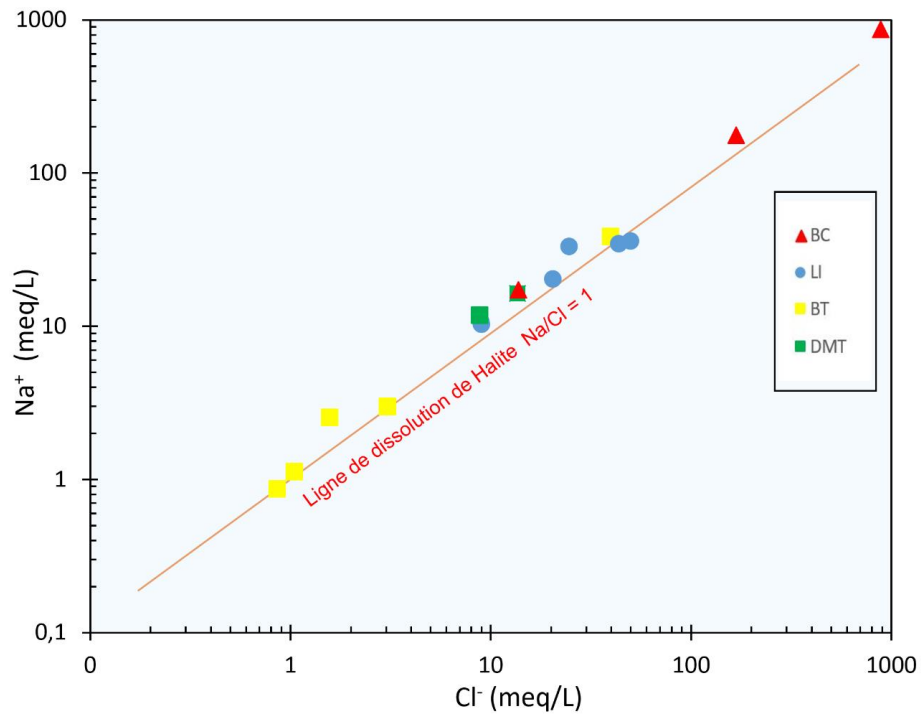


Fig. 33. Na^+ versus Cl^-

IV.2.2. Na^+/Cl^- versus $\text{Ca}^{2+}/(\text{HCO}_3^- + \text{SO}_4^{2-})$

La Figure 34 montre que les échantillons ont subi des échanges de base liés à un excès de Sodium.

La quasi-totalité des sources thermales du nord-ouest algérien ne présentent pas un déficit en Ca^{2+} et Na^+ , ce dernier est lié à la présence des évaporites dans les matériaux d'aquifères des systèmes hydrothermaux de la région. Par ailleurs, un déficit en Na^+ peut également résulter d'un contact avec des argiles calciques, qui échangent deux atomes de Na^+ pour un atome de Ca^{2+} , provenant de la dissolution du gypse. Un excès en calcium par rapport aux ions HCO_3^- et SO_4^{2-} résulte alors de ce processus (cas des eaux de Hammam Bouhdjar (S15) et Sidi Ayd (S16)). Par conséquent, on peut déduire que les formations carbonatées et gypseuses sont à l'origine du Calcium (Binet et al., 2009).

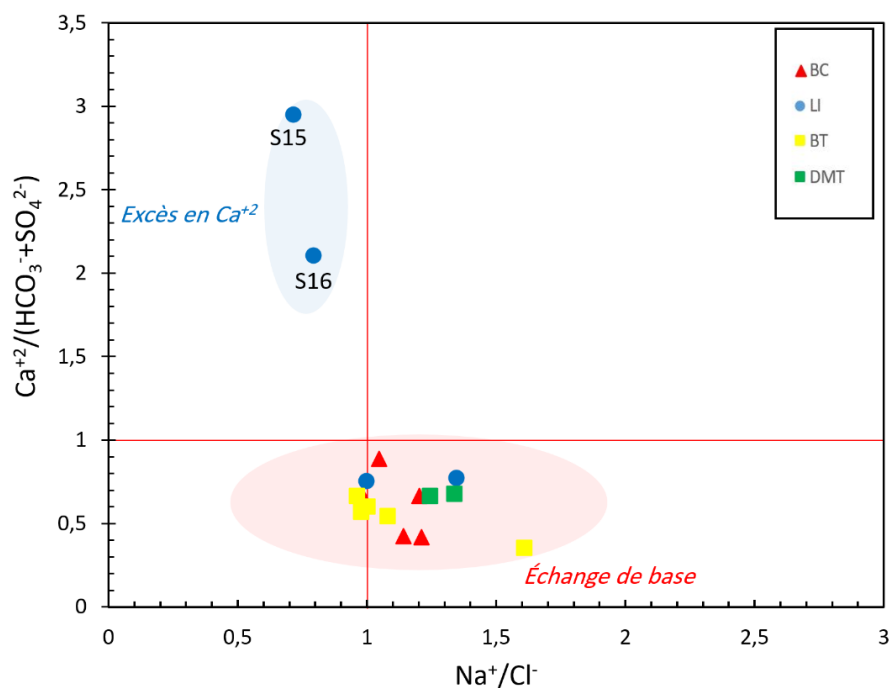


Fig. 34. $\text{Ca}^{+2}/\text{HCO}_3^{-}+\text{SO}_4^{2-}$ versus $\text{Na}^{+}/\text{Cl}^{-}$.

IV.2.3. Calcium versus Sulfate

Une forte corrélation est remarquée entre le calcium et le sulfate ($R=0,96$) (Fig. 35). Cette corrélation peut s'expliquer par la dissolution du sulfate de calcium (gypse et anhydrite présents dans les formations sédimentaires) (Bouaicha et al., 2019 ; Ayari et al., 2023) (voir aussi les indices de saturation). Certains points sont situés au-dessus de la ligne de dissolution du gypse (1:1), ce qui indique qu'il existe d'autres réactions conduisant à un excès d'ion Ca^{2+} ou à l'absence d'ion SO_4^{2-} (Liu et al., 2023). Cet excès en Ca^{2+} n'est pas très important par rapport à SO_4^{2-} pour confirmer que les processus d'échange d'ions inverse déclenché par l'intrusion d'eau de mer ont lieu (Paul et al., 2019). Néanmoins, ceci n'exclut pas d'autres sources de calcium, en plus de la dissolution du gypse ou de l'anhydrite.

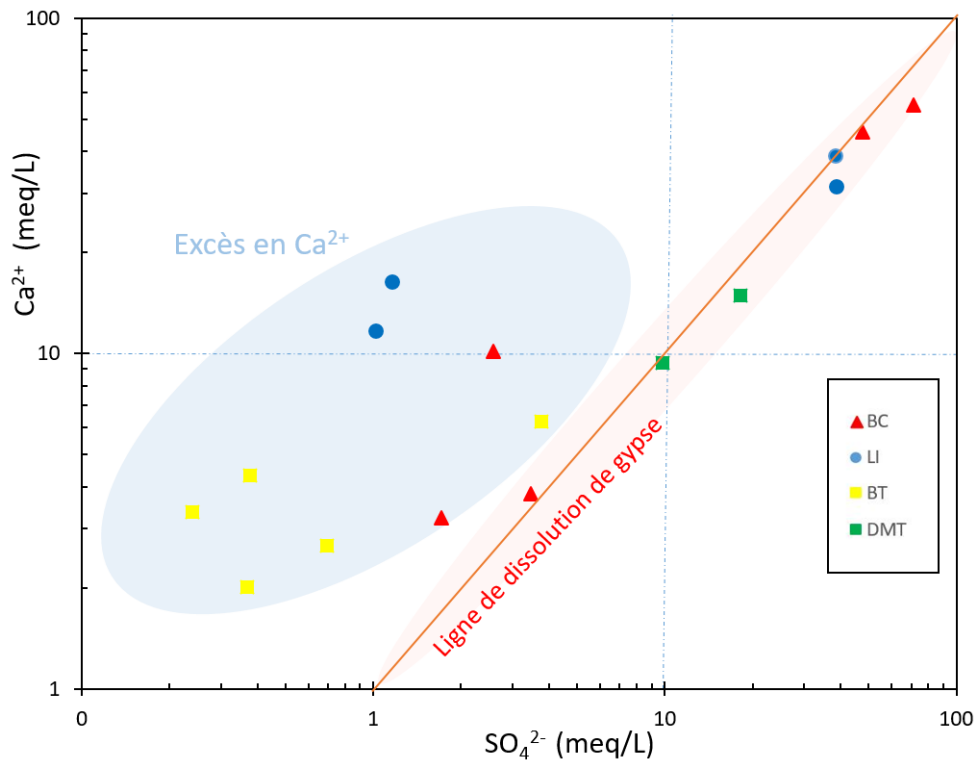


Fig. 35. Ca^{2+} versus SO_4^{2-}

IV.2.4. Calcium versus Bicarbonates

Étant donné que le calcium peut provenir aussi bien des carbonates que des gypses, l'utilisation du diagramme binaire Ca^{2+} - HCO_3^- permet de différencier ces deux origines (Fig. 36). L'analyse de ce diagramme montre que certains points s'alignent autour de la droite de dissolution de la calcite, traduisant l'origine carbonatée des ions calcium. D'autres eaux de sources présentent un excès en calcium, ce qui traduit une origine évaporitique, par dissolution de gypse.

En effet, la présence des gypses au niveau des émergences des sources d'Ain Franin, Béni Yessaad, Mkeberta et Mentila, et les affleurements des carbonates dans le bassin de Tafna et du domaine Tlemcenien confirment ces résultats.

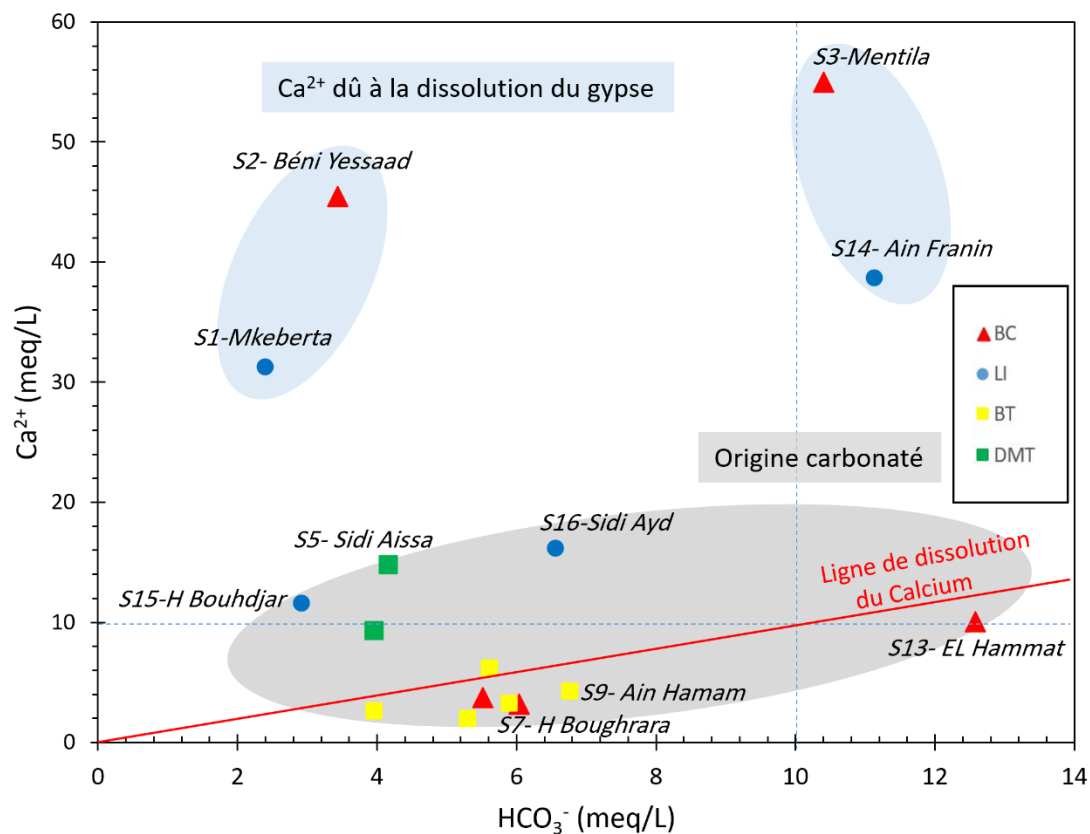


Fig. 36. Ca^{2+} versus HCO_3^-

IV.2.5. Na^+/Cl^- versus $\text{HCO}_3^-/\text{Ca}^{2+} + \text{SO}_4^{2-}$

Le processus clé de contrôle de la chimie des eaux thermales du Nord-Ouest algérien est résumé sur la figure 37. Le rapport Na^+/Cl^- est presque égal à 1 pour l'ensemble des échantillons. Ceci confirme que les concentrations en Na^+ et Cl^- sont principalement contrôlées par la dissolution des formations salifères du Trias riche en halite (Fourré et al., 2011 ; Belhai et al., 2022). Les eaux thermales liées au bassin de la Tafna et les sources de Bouhnifia (Hammam Bouhnifia, El Hamia, et el Hammat) sont principalement orientées vers la droite, vers la dissolution de la calcite) qui reflète clairement la nature carbonatée du réservoir.

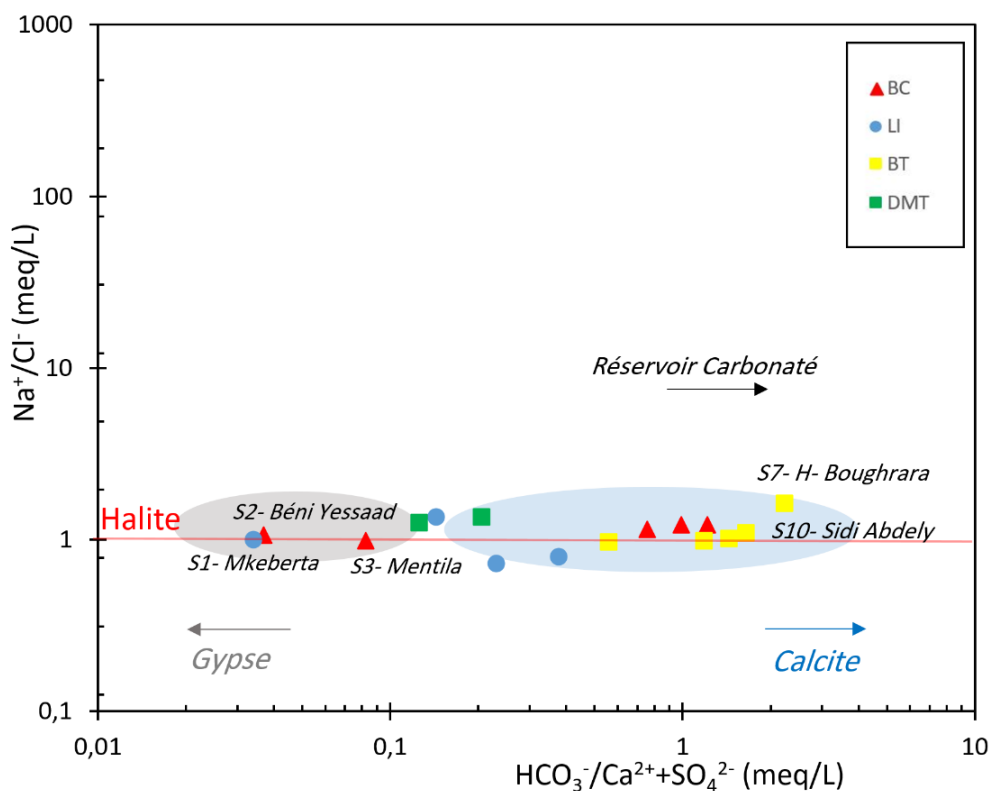


Fig. 37. Na^+/Cl^- versus $\text{HCO}_3^-/\text{Ca}^{2+}+\text{SO}_4^{2-}$

IV.3. Eléments traces

Il a été observé que la majorité des concentrations les plus élevées en certains éléments traces tels que le baryum (Ba^{2+}), le fer (Fe), le strontium (Sr^{2+}), l'aluminium (Al^+), le lithium (Li^+) et le rubidium (Rb^{+1}) se trouvent souvent dans les eaux de type Na-Cl matures, ce qui peut suggérer que l'augmentation de la concentration de ces éléments dans les eaux thermales est due à un temps de séjour plus long et aux interactions eau-roche.

IV.3.1. Strontium

Le strontium est largement reconnu pour fournir des informations sur l'évolution et l'origine des eaux souterraines, difficiles à obtenir en étudiant uniquement les caractéristiques physiques et chimiques de la qualité de l'eau (Xie et al., 2013 ; Boschetti et al., 2018). Les concentrations de strontium et la composition des ions majeurs sont des paramètres fréquemment utilisés pour étudier l'origine géologique et les processus hydrogéochimiques (Bakari et al., 2013 ; Christensen et al., 2018).

Le strontium et le calcium ont un comportement géochimique semblable et sont souvent bien corrélés ($R = 0,84$). Les rapports des concentrations de Sr^{2+} sur Ca^{2+} montrent une relation systématique indiquant la même évolution de Sr^{2+} et Ca^{2+} lors de l'interaction eau-roche (Wang et al., 2006). Les eaux thermales de la zone d'étude sont proches des conditions d'équilibre par rapport à la calcite et à la dolomite, en étant sursaturée ce qui suggère une dissolution significative

des carbonates (Rao et al., 2015). L'augmentation du Sr^{2+} avec le Ca^{2+} de l'eau souterraine favorise davantage le contrôle de la signature du Sr par la fraction carbonate (Qian et al., 2023).

Le Sr peut occuper les sites libres des réseaux cristallins de certains minéraux carbonatés comme la calcite, dolomite et aragonite, et beaucoup plus dans la structure cristalline du gypse sous forme de celestite (SrSO_4) et les minéraux argileux (Alonso-azcárate et al., 2006 ; Keesari et al., 2022). Les faibles concentrations en Sr sont à l'origine des sulfates, à partir de l'oxydation des sulfures. Par ailleurs, les fortes concentrations proviennent de la dissolution des évaporites : c'est le cas des sources thermales de Béni Yessaad, Mentila, Ain Franin et Mekeberta (Fig. 38).

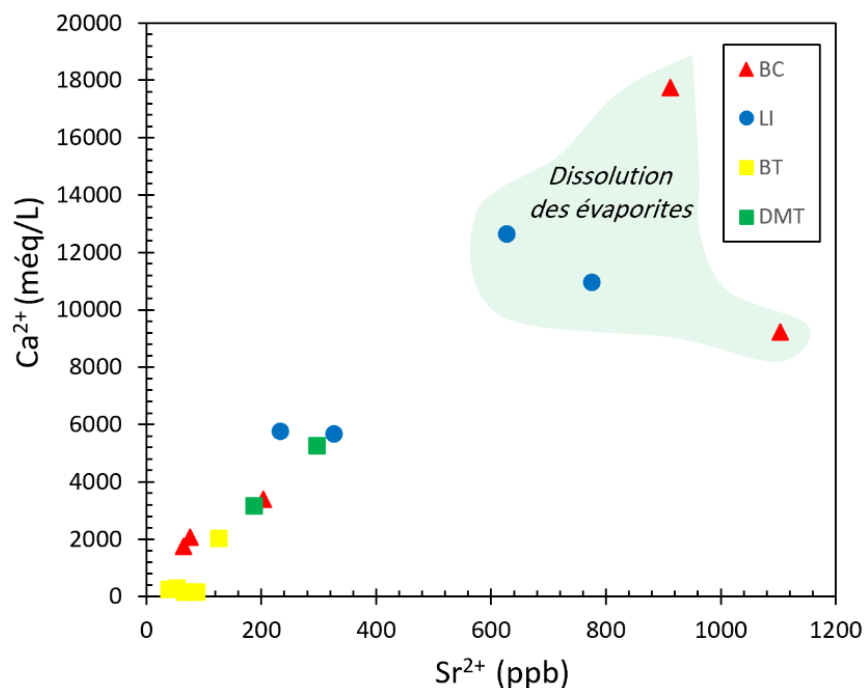


Fig. 38. Relation entre Sr^{2+} et Ca^{2+} dans les eaux thermales

IV.3.2. Lithium, Rubidium et Arsenic

Les concentrations de Li^+ et de Rb^+ augmentent généralement avec l'augmentation de la température (Fig. 39a et b), mais ils peuvent également être incorporés dans les minéraux d'altération, par exemple, lorsque Rb^+ remplace K^+ , et Li^+ remplace Mg^{2+} (Kaasalainen et al., 2015). Les métaux alcalins ne forment pas leurs propres minéraux secondaires dans les systèmes géothermiques, mais il est connu que plusieurs minéraux d'altération géothermiques courants, notamment les feldspaths, le quartz, les argiles et les zéolites, les récupèrent (Berger et al., 1998).

Les rapports des concentrations des métaux alcalins Li^+/K^+ et Rb^+/K^+ dans les eaux thermales sont presque toujours proches de 0, ce qui suggère qu'ils pourraient être similaires à ceux des roches environnantes. Cette corrélation systématique entre ces éléments traces et les éléments alcalins

majeurs indique que les éléments alcalins traces évoluent de la même façon que le potassium (K^+) lors de l'interaction fluide-roche dans les eaux thermales du nord-ouest algérien (Fig. 39c et d), impliquant ainsi une même source géologique.

L'arsenic dans les systèmes géothermiques semble principalement provenir de la lixiviation de la roche réservoir (Sracek et al., 2019). Un pH élevé de l'eau est un facteur qui diminue l'adsorption des As-oxyanions (Sracek et al., 2004). En comparaison avec les eaux alcalines, les eaux thermales ayant un pH <7 présentent généralement des concentrations plus élevées en arsenic, car un pH bas et une forte concentration en matière organique sont des facteurs favorisant la mobilisation de l'arsenic dans les eaux (Mehlhorn et al., 2014).

Les résultats de notre analyse révèlent que certains échantillons d'eau thermale avec un pH inférieur à 7 présentent effectivement des concentrations élevées en Arsenic par rapport à d'autres échantillons (Fig. 39e). Cette observation est en accord avec la littérature qui suggère que les eaux thermales à pH bas ont tendance à avoir des concentrations d'arsenic plus élevées ; bien que nous ayons noté une corrélation négative entre le pH et l'arsenic ($R = -0,28$).

L'un des principaux défis pour évaluer le comportement géochimique de l' As^{3-} , ainsi que d'autres éléments traces tels que Sb^{3-} et Mo^{6+} , est la difficulté à résoudre leur spéciation aqueuse par des calculs thermodynamiques, car ils sont principalement présents sous forme d'oxyanions dans les eaux géothermales (Kaasalainen et al., 2015). Les stabilités thermodynamiques de ces éléments à des températures élevées sont pour la plupart inconnues.

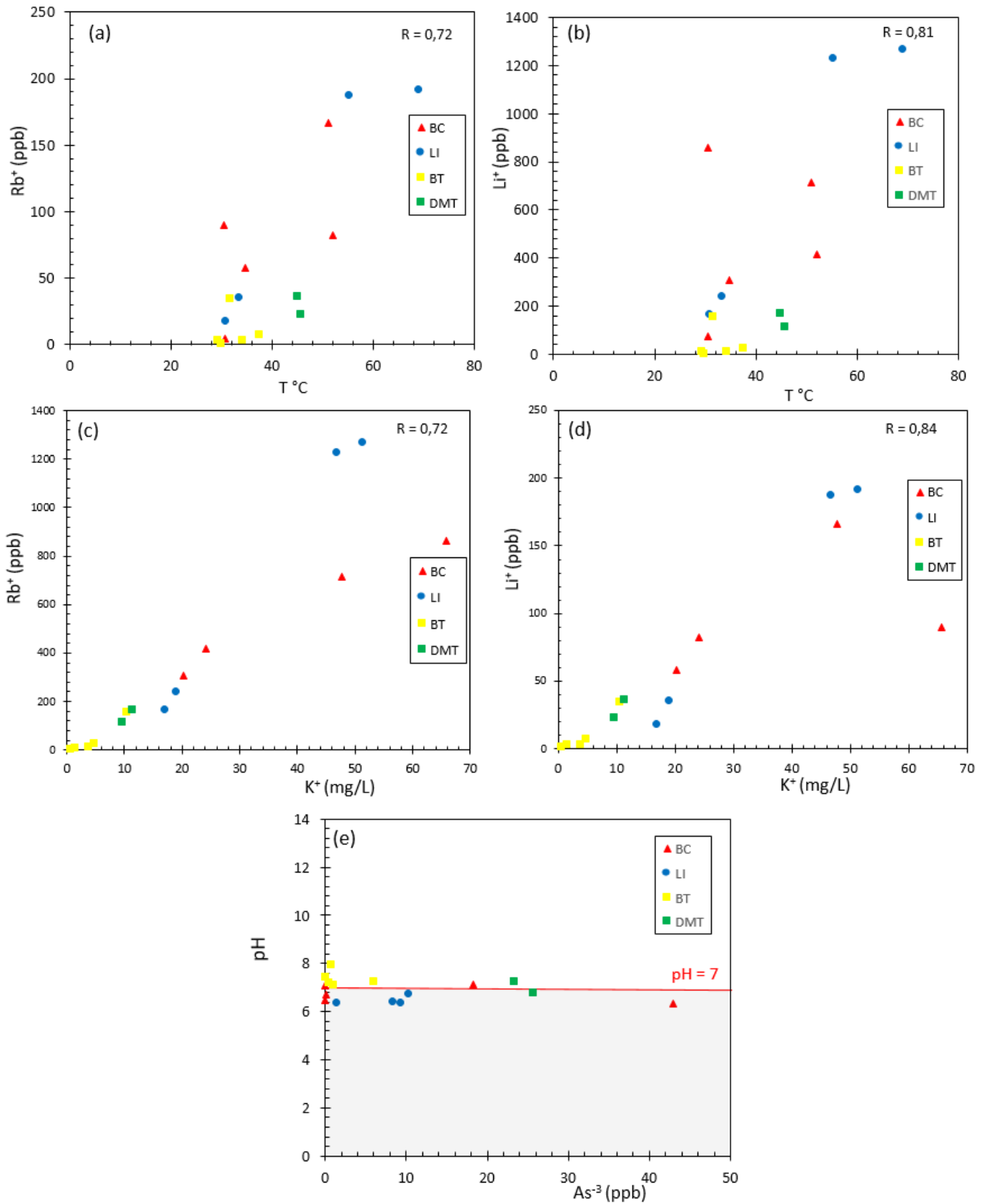


Fig. 39. Relation entre : Rb⁺ et T °C (a), Li⁺ et T °C (b), Rb⁺ et K⁺ (c), Li⁺ et K⁺ (d), As⁻³ et pH (e)

IV.4. Indices de saturation

L'indice de saturation permet de déterminer le degré de saturation des eaux par rapport aux minéraux présents ou susceptibles de se précipiter. Il est défini par le logarithme du rapport des produits d'activité ionique (PAI) sur K la constante d'équilibre relative à la dissolution du minéral, donc il peut être représenté par :

$$I.S = \log (IAP/K)$$

La détermination des indices de saturation permet de fournir des informations sur l'environnement géologique de circulation des eaux. Ces indices indiquent l'état chimique de la solution, si une solution est en équilibre, sous saturée ou super saturée par rapport à une phase solide.

- Lorsque $IS < 0$, la solution est sous-saturée par rapport au minéral (dissolution du minéral).
- Lorsque $IS = 0$, la solution et la phase solide sont à l'équilibre (équilibre).
- Lorsque $IS > 0$, la solution est sursaturée par rapport au minéral (précipitation).

Les indices de saturation (**IS**) ont été calculés pour l'ensemble des échantillons des sources thermales prélevées à l'aide du programme de simulation Phreeqc Interactive (Par- khurst and Appelo, 1999) à partir des résultats des éléments majeurs, en tenant compte du pH et des températures à l'émergence. Les résultats sont synthétisés sur la figure 40 (Fig. 40). Pour chaque groupe de sources, les valeurs des IS sont également présentées sous forme de tableau et graphe par domaine : les IS des sources du littoral (Fig. 41), les IS des sources du bassin du Chélif (Fig. 42), les IS des sources de Bassin de la Tafna (Fig. 43), et les IS des sources du domaine Tlemcenien (Fig. 44) respectivement.

L'analyse générale des valeurs des indices de saturation pour l'ensemble des sources montre une grande variabilité, traduisant l'importance de l'interaction entre l'eau et la roche. La plupart des eaux échantillonnées ne sont dominées par la sursaturation avec aucune espèce minérale. Néanmoins, les eaux sont parfois en équilibre, ou proches de l'équilibre à sursaturées par rapport aux minéraux carbonatés : calcite, aragonite et dolomite.

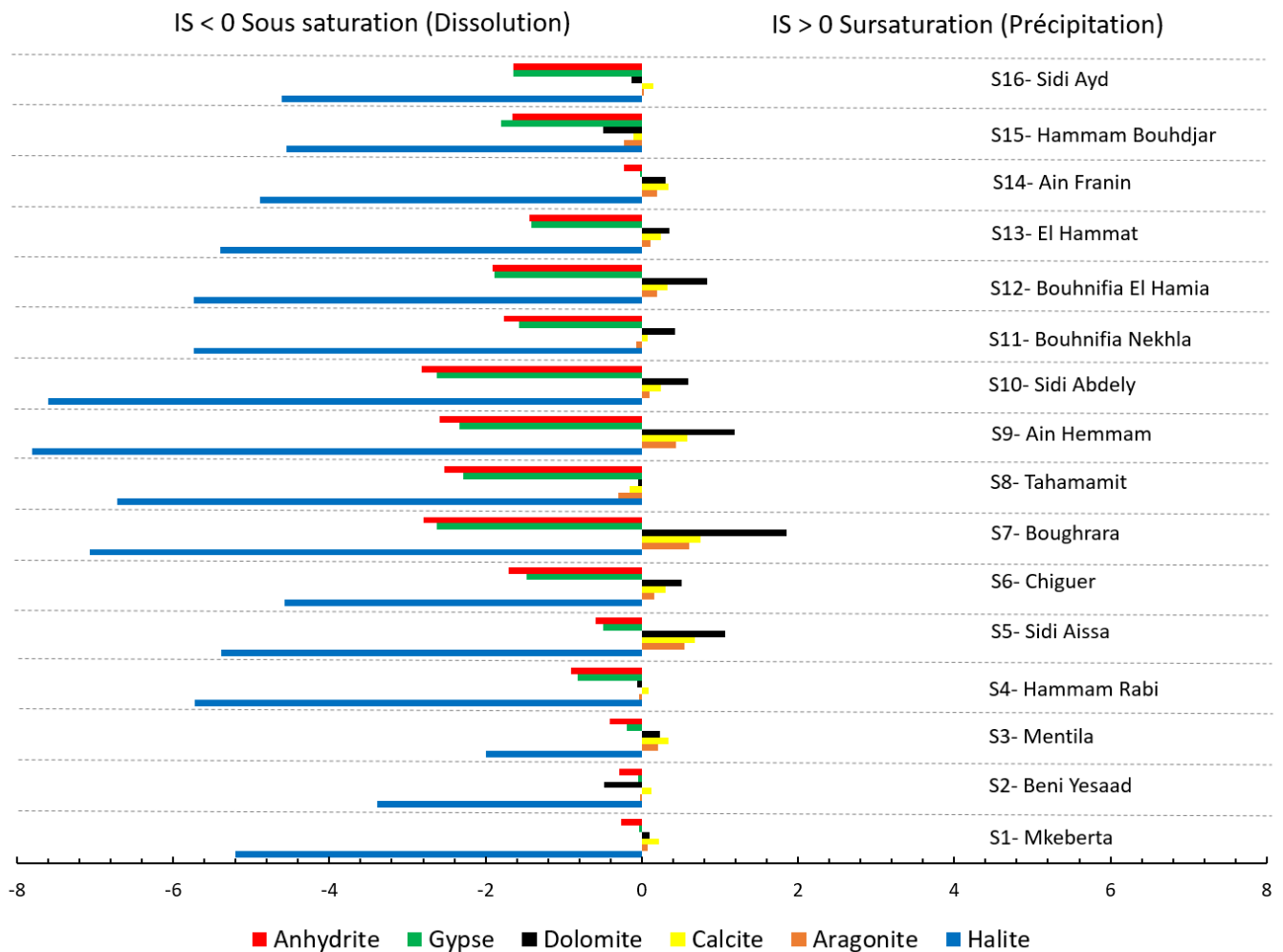


Fig. 40. Indices de saturation des eaux étudiées

Les eaux des sources thermales liées au littoral (LI) ne présentent aucun état de sursaturation remarquable (Fig. 41), que ce soit par rapport aux carbonates ou par rapport aux évaporites, à l'exception de la source d'Ain Franin, qui présente une légère sursaturation vis-à-vis de la calcite, et un état d'équilibre vis-à-vis du gypse, ce qui explique le facies sulfaté de la source.

Les eaux des sources liées au Bassin du Chéelif (BC) ont des indices proches de l'équilibre à légèrement sursaturées en calcite (Fig. 42). Elles sont sous-saturées vis-à-vis des minéraux évaporitiques.

Les eaux des sources du bassin de la Tafna (BT) ont des indices de saturation bien plus importants par rapport aux minéraux carbonatés (Fig. 43), notamment vis-à-vis de la calcite, la dolomite et l'aragonite, ce qui confirme la présence de carbonates dans ces formations aquifères.

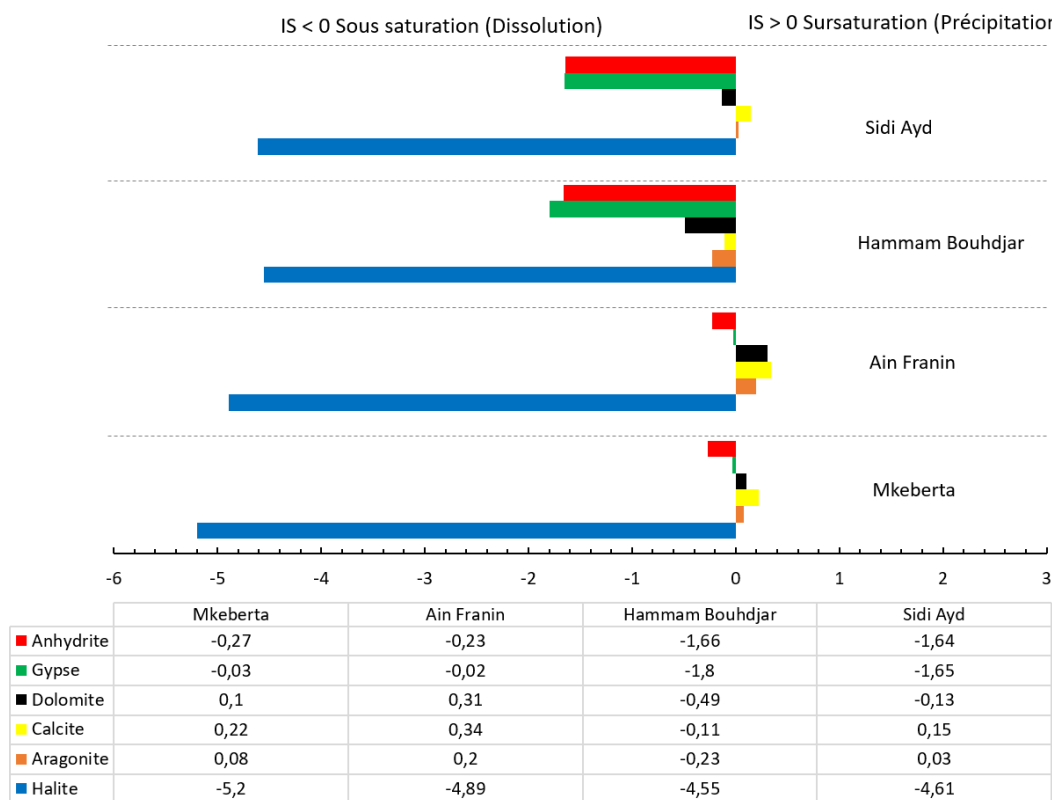


Fig. 41. IS des eaux des sources liées au littoral oranais (LI)

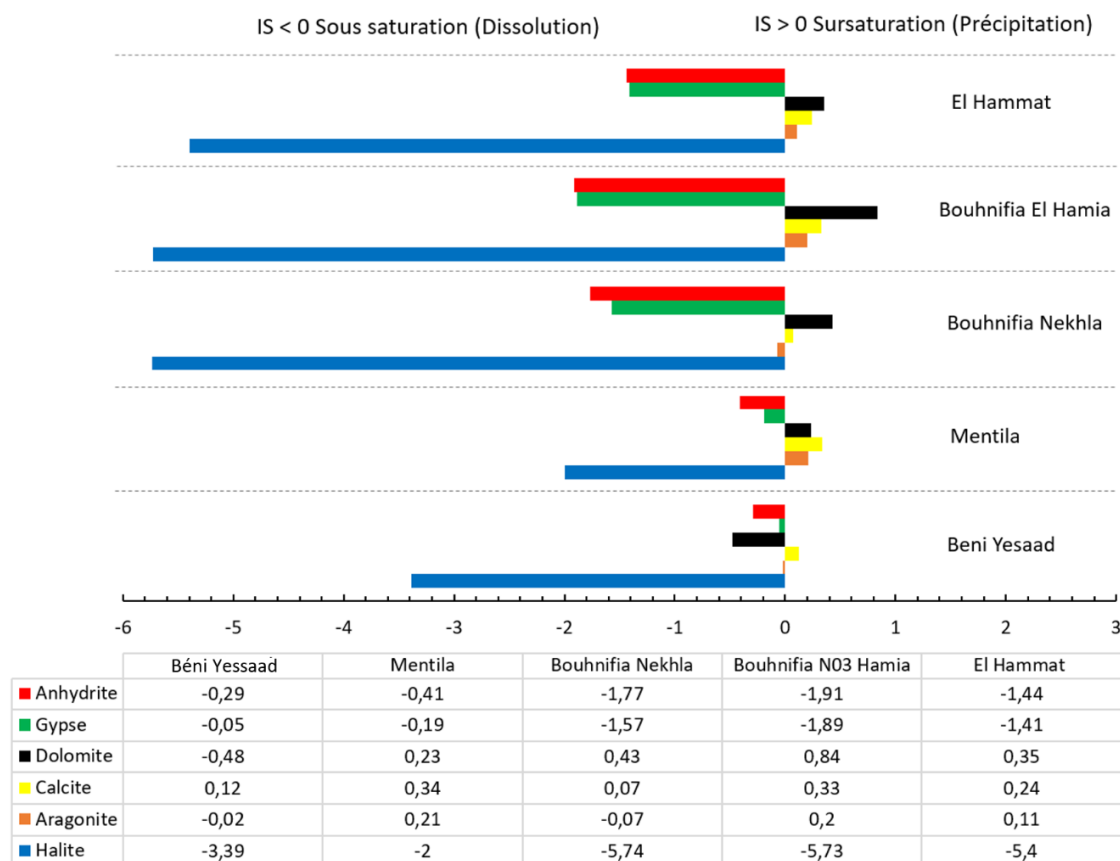


Fig. 42. IS des eaux des sources liée au Bassin du Chélif (BC)

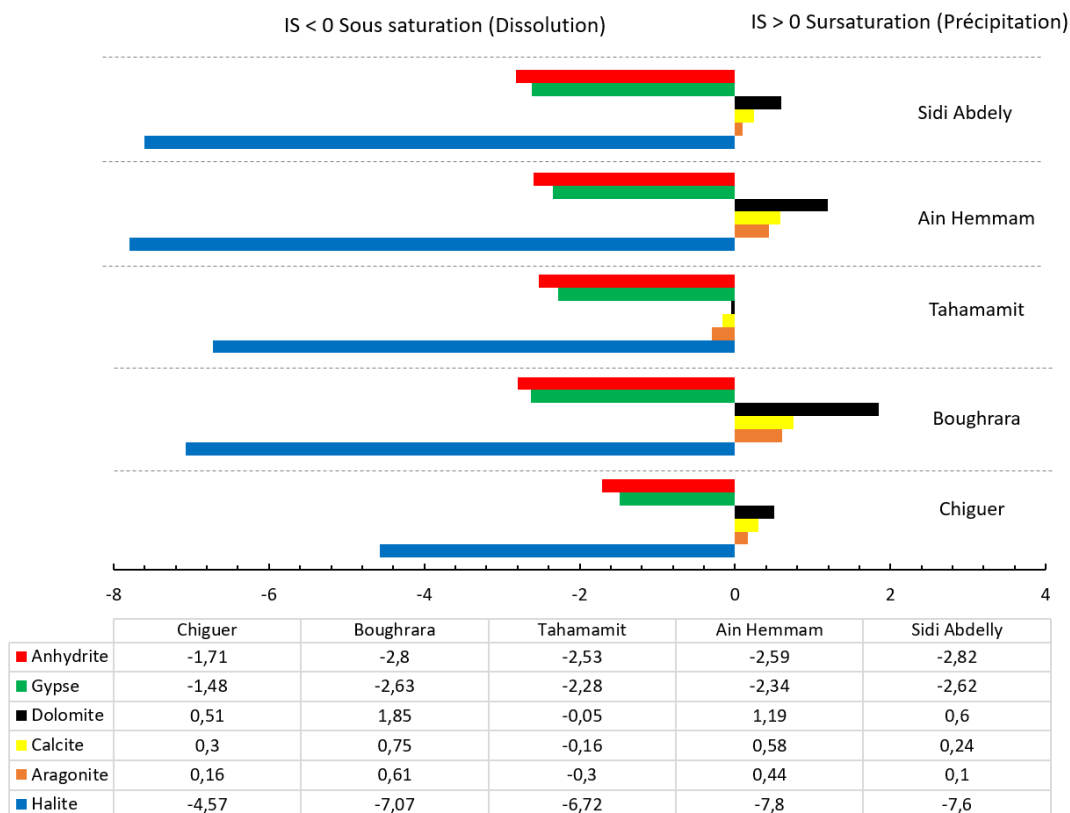


Fig. 43. IS des eaux des sources du Bassin de la Tafna (BT)

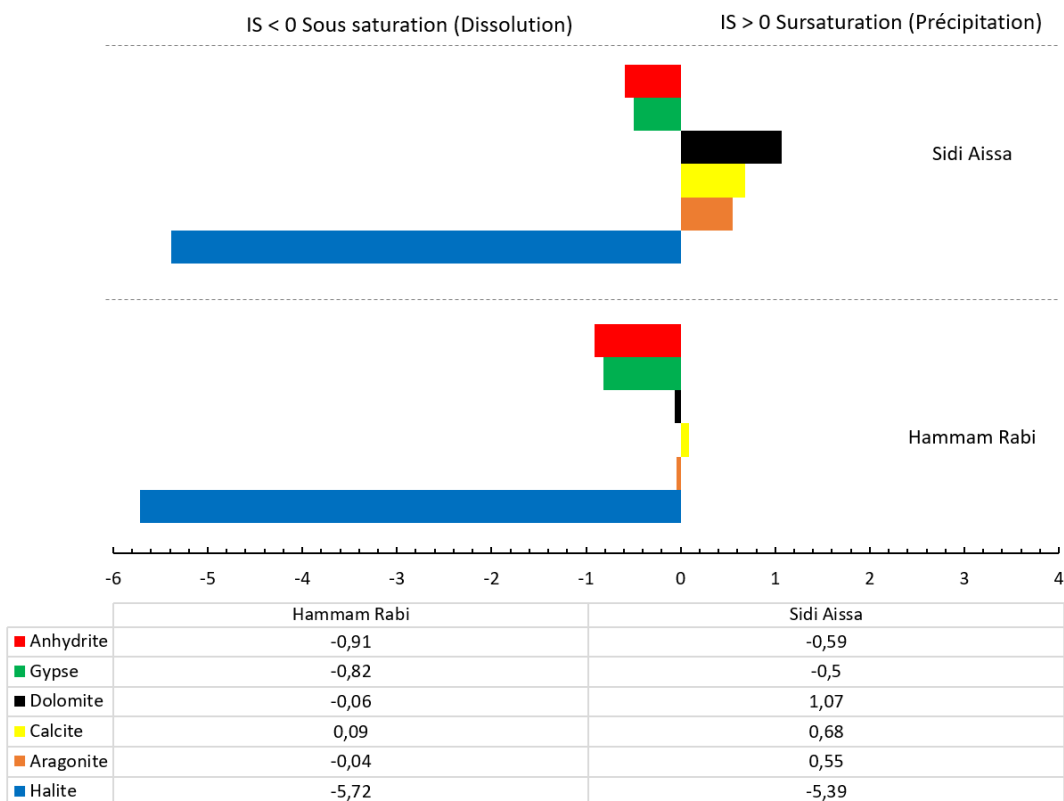


Fig. 44. IS des eaux des sources du domaine Tlemcenien (DMT)

Les eaux thermales des sources liées au domaine Tlemcenien (DMT), ne présentent pas une grande différence par rapport aux autres groupes (Fig. 44), avec une eau sous saturée par rapport aux minéraux évaporitiques, à presque en équilibre avec les carbonates au niveau de Hammam Rabi ; contrairement à l'eau de la source de Sidi Aissa, qui est sursaturée par rapport aux trois minéraux carbonatés (dolomite, calcite et aragonite).

Conclusion

Dans ce chapitre, notre objectif principal a été de comprendre l'interaction entre l'eau des sources thermale et la lithologie à travers une approche hydrogéochimique. L'analyse détaillée de la composition chimique des fluides hydrothermaux, ainsi que l'interprétation des données en termes d'éléments majeurs et de traces, nous ont permis d'approfondir notre compréhension de ces systèmes complexes et des processus qui les régissent.

Les eaux thermales du Nord-Ouest algérien sont hétérogènes, aussi bien en terme de composition hydrogéochimique qu'en terme de minéralisation. Cette hétérogénéité est principalement due aux interactions entre les eaux thermales et les formations géologiques des réservoirs géothermaux. Les concentrations variables en cations et anions sont influencées par de nombreux facteurs tels que la composition lithologique des sols et des sous-sols traversés, ainsi que des trajets parcourus et des temps de séjour et de contacts avec les minéraux et roches environnantes.

Les analyses et les classifications hydrogéochimiques basées sur les diagrammes de Stabler, Piper et ternaire Cl^- - SO_4^{2-} - HCO_3^- ont permis de déterminer différents faciès, les eaux du type bicarbonaté calcique à magnésienne-sodique représentent seulement 12,5% des sources et sont caractérisées par une faible minéralisation par rapport aux autres faciès (CE comprise entre 692-1073 $\mu\text{S}/\text{cm}$). Elles sont majoritairement présentes dans le domaine des sources liées au Bassin de la Tafna (Hammam Bouhrara, Tahamamit, Ain Hamam et Sidi Abdely). Les eaux à faciès sulfatée calcique représentent 25% des sources, ce faciès est bien représenté par les sources d'Ain Franin, Mkeberta, Hammam Bouhrara et Sidi Aissa. Le faciès dominant est celui des eaux chlorurées, représentant 50% des sources thermales du nord-ouest algérien étudiées. Ces eaux sont très minéralisées et riches en éléments dissous, avec une forte teneur en sodium.

Les diagrammes binaires des éléments chimiques ont permis de déterminer les processus clés qui influencent la chimie des eaux. Les eaux acquièrent leur minéralisation en entrant en contact avec les formations carbonatées du Jurassique et les évaporites du Trias, principalement grâce à la dissolution de la calcite, de l'halite et du gypse.

Comparé aux autres éléments traces, le strontium présente des concentrations élevées qui peuvent provenir de la dissolution des évaporites.

L'examen des indices de saturation des minéraux carbonatés et évaporitiques a montré que la plupart des sources étudiées ne présentent pas de sursaturation significative.

PARTIE II

*Caractérisation de la radioactivité et des radionucléides
dans les systèmes hydrothermaux du Nord-Ouest algérien :*

*Méthodologies d'analyse, étude des isotopes du Radium et du Radon
dans les eaux, et impact des sulfates sur la géochimie du Radium*

Chapitre IV

Section 1

Radioactivité et Radionucléides

I. Introduction

Le but principal de ce chapitre est de mettre en évidence l'état actuel et l'importance de l'utilisation des isotopes du Radium (^{223}Ra , ^{224}Ra , ^{226}Ra , ^{228}Ra) et du Radon (^{222}Rn) dans les eaux souterraines. Afin d'améliorer notre compréhension des différentes applications ou utilisations, il est nécessaire de rappeler les principes et processus de la décroissance radioactive, les propriétés hydrochimiques et géochimiques de ces éléments radioactifs ainsi que la méthodologie d'analyse utilisée dans cette étude.

Les radionucléides des trois séries naturelles de désintégration de l'Uranium 238 (^{238}U), du Thorium 232 (^{232}Th) et de l'Uranium 235 (^{235}U) sont présents partout dans l'écorce terrestre, et se trouvent quasiment dans tous les matériaux. De ce fait, ils peuvent également être présents dans les eaux souterraines et dans les aquifères profonds. L'étude de la radioactivité naturelle de la série de l'uranium dans l'eau fournit des informations utiles pour de nombreuses applications (santé, hydrologie, géochimie, etc.) et par conséquent, l'utilisation des radionucléides à longue et courte période en hydrogéologie a connu un succès progressif cette dernière décennie.

Les radionucléides des séries de désintégration de l'uranium (U) et du thorium (Th) ont servi de traceurs et de chronomètres des processus dans les milieux aquatiques, particulièrement dans les systèmes hydrothermaux (Clark et al., 1990 ; Sturchio et al., 1993).

Grâce à leurs propriétés chimiques distinctes et des demi-vies variant de quelques secondes à des millions d'années, ces radionucléides peuvent offrir des informations précieuses sur une gamme de processus qui se produisent à cette échelle de temps. Certains de ces radioéléments comme le Radon ont été utilisés pour évaluer les fracturations qui peuvent affecter les aquifères d'eaux souterraines (Sukanya et al, 2021). Cependant, la plupart des études se concentrent sur l'investigation des niveaux élevés des radionucléides et l'estimation de l'exposition des personnes aux rayonnements provenant de l'utilisation de l'eau (consommation, balnéologie, etc.), sans pour autant essayer de comprendre le comportement hydrogéochimique de ces radioéléments et leur origine dans les eaux profondes.

Chaque élément radioactif a ses propres propriétés physiques et chimiques, qui dépendent par ailleurs des conditions environnementales. Même si les propriétés physiques, chimiques et thermodynamiques de ces radionucléides sont bien connues en théorie, leur comportement demeure imprévisible dans des systèmes complexes tels que les eaux souterraines peu profondes ou profondes, comme c'est le cas des eaux thermales, ainsi que l'eau de mer.

II. Radiation naturelle et processus de désintégration radioactive

Toute matière, vivante ou non, est continuellement exposée au rayonnement naturel. Les sources de rayonnements naturels sont aussi bien d'origine terrestre qu'extraterrestre. Les rayons cosmiques extraterrestres sont une source importante d'exposition aux rayonnements externes à haute altitude. Le rayonnement des radionucléides dans la croûte terrestre provient de la terre, provoquant une exposition à la fois externe et interne des organismes.

Il y a environ 340 nucléides présents dans la nature, dont 70 sont des radionucléides (M. Eisenbud et T. Gesell, 1997). Les radionucléides naturels peuvent être classés en deux catégories : ceux qui se produisent individuellement, tels que ^3H , ^7Be , ^{14}C , ^{40}K , ^{50}V , et ceux qui font partie des trois chaînes de radionucléides représentées par la Figure 45. Pour détecter l'activité des radionucléides présents dans des matériaux naturels tels que l'air, les roches, l'eau et les tissus végétaux et animaux, il est indispensable de recourir à des techniques d'analyse hautement sensibles à la détection. Les périodes des radionucléides présents dans ces chaînes varient de quelques microsecondes (par exemple, ^{214}Po avec une période de 164,3(20) μs) à plusieurs centaines de milliers d'années, comme ^{234}U ($2,455(6) \times 10^5$ ans) (Choppin et al., 2002).

III. Désintégration radioactive

La radioactivité est un phénomène naturel qui implique la transformation spontanée de noyaux atomiques instables, qui émettent des particules et des rayonnements électromagnétiques. Tous les éléments avec des numéros atomiques (Z) supérieurs à 80 ont au moins un isotope radioactif et tous les éléments avec des numéros atomiques supérieurs à 83 sont des radioéléments (L'Annunziata, 2012).

Lorsqu'un radionucléide subit une désintégration radioactive, le noyau fille résultant peut également être radioactif, formant ainsi un troisième noyau "petit-fils" qui peut également être radioactif. On appelle chaîne de désintégration ce processus de production continue de radionucléides par la désintégration d'un radionucléide parent (Choppin et al., 2002).

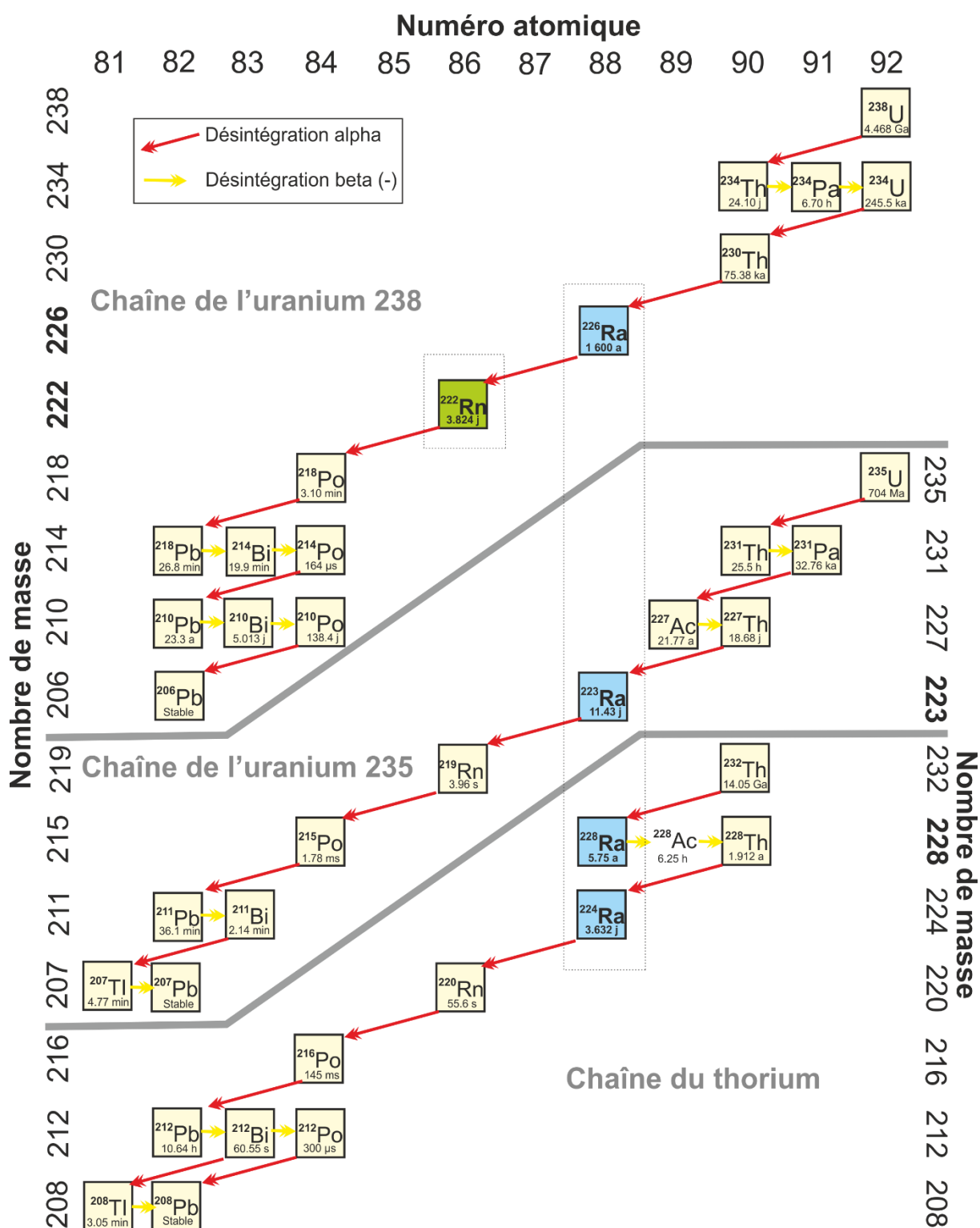


Fig. 45. Chaînes de désintégration radioactive naturelle du ^{238}U , ^{235}U et ^{208}Th (D'après Arnold, 2017, modifiée)

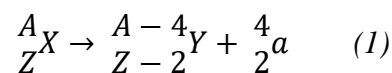
La désintégration radioactive est un phénomène aléatoire et indépendant des conditions environnementales et chimiques telles que la température, la pression ou l'état d'oxydation. Ce processus transforme un noyau radioactif appelé "noyau parent" en un autre noyau appelé "noyau fils" en émettant des photons et/ou des particules, tout en conservant la quantité de mouvement,

la masse et l'énergie. La différence d'énergie entre les noyaux parent et fils correspond à l'énergie de désintégration. Ces principes sont bien établis selon Lieser (2001) et Choppin et al., (2002).

Les types de rayonnements les plus courants émis par les radionucléides naturels sont les rayonnements α , β , γ , fission nucléaire, émission de protons et neutrons et autres (Choppin et al., 2002). Les rayonnements alpha, bêta et gamma, qui sont des formes de désintégration radioactive, sont couramment utilisés pour analyser la plupart des radionucléides ayant une importance géochimique. Ces trois types de rayonnement sont également désignés sous le nom de rayonnement nucléaire, étant donné leur origine dans le noyau atomique. Le rayonnement nucléaire appartient au groupe des rayonnements ionisants à cause de sa capacité à ioniser les atomes. Les types de désintégration radioactive alpha, bêta et gamma seront décrits plus en détail.

III.1. La désintégration alpha (α)

Lors d'une désintégration alpha, le noyau père instable (X) perd deux protons et deux neutrons, créant ainsi un noyau d'hélium doublement ionisé. Cette transformation conduit à la création d'un nouvel élément (Y) et s'accompagne de l'émission d'une particule alpha. Le nombre de protons dans le nouvel élément correspond au numéro atomique Z de la particule alpha émise (équation 1).



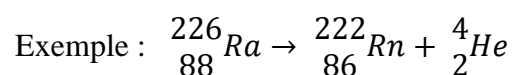
où :

X= noyau père (instable)

A= nombre de nucléons (protons + neutrons)

Y= nouvel élément

Z= nombre de protons

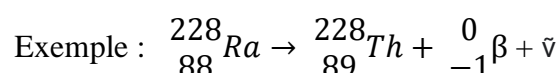
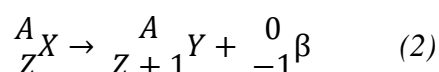


Après avoir été émises par le noyau, les particules alpha subissent des interactions avec la matière en entrant en collision avec les électrons présents dans les orbites d'autres atomes. Ces collisions peuvent également entraîner un changement d'orbite des électrons, qui est causé par l'interaction électromagnétique entre les particules alpha (α^{2+}) et les champs électromagnétiques des autres atomes.

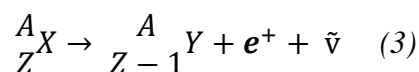
III.2. La désintégration beta (β^-)

Ce deuxième type de désintégration naturelle (β^-) se produit lorsqu'un noyau père (X) émet une particule β^- . Cette désintégration existe sous deux formes :

La première forme de désintégration β^- se produit lorsque le noyau père (X) a un excès de neutrons. Elle consiste en la transformation d'un neutron en un proton, avec émission d'un électron β^- et d'un antineutrino ($\bar{\nu}$) (réaction 2). Cette émission β^- est moins efficace pour interagir avec la matière que les particules alpha (Choppin et al., 2002).



Une autre forme de ce type de désintégration, le positron β^+ , affecte les noyaux contenant des protons en excès. En conséquence, les protons sont transformés en neutrons, émettant des particules positives, des positrons (e^+) et des neutrinos ($\bar{\nu}$) (équation 3).



Les radionucléides étudiés ne subissent pas ce type de désintégration.

III.3. L'émission de rayons gamma (γ)

L'émission γ est un rayonnement électromagnétique de haute énergie lié aux rayons X. Cela se produit lorsqu'un noyau atomique est mis dans un état excité par un événement de désintégration et que celui-ci retombe dans un état d'énergie inférieure. Les rayons γ ont des valeurs d'énergie exprimées en unité keV (10-3 MeV) (Knoll, 2010) qui sont considérablement supérieures à celles des particules α ou β . Cette énergie est considérablement plus grande que celle des particules α ou β .

Il est possible de constater sur la figure 46 que lorsque la particule alpha ${}^{226}Ra$ est émise à une énergie de 4784 keV, l'état fondamental (0 keV) est atteint par le radionucléide fils (Radon-222). Toutefois, pour une émission de particules alpha à 4601 keV, le Radon est émis à un état énergétique plus élevé (avec une augmentation de 186,2 keV, indiquée en rouge sur la Fig. 46) (Arnold, 2017). Cette énergie excédentaire est soit libérée sous forme de photon gamma caractéristique de 186,2 keV, soit transférée directement à l'électron émis depuis son orbite, par

un phénomène de conversion interne. En conséquence, l'intensité du photon gamma ($I_g = 3,59\%$) est inférieure à $5,5\%$ (LaMont et al., 2001). En outre, les rayons gamma ont une capacité de pénétration de la matière supérieure aux particules alpha et bêta (L'Annunziata, 2012).

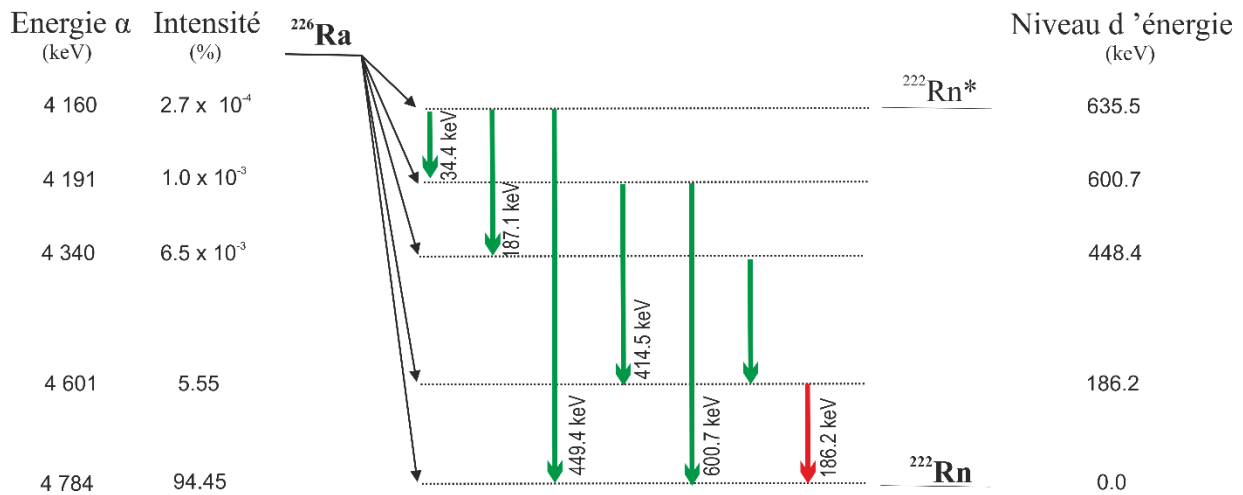


Fig. 46. Désintégration du Radium 226 (d'après Lederer et al., 1967, modifié). L'intensité la plus élevée ($I_g = 3,59\%$) correspond à l'énergie du photon gamma représenté par la flèche rouge sur ce schéma.

III.4. Décroissance et loi de désintégration radioactive

En 1902, Rutherford et Soddy ont constaté que les atomes radioactifs se désintègrent sans être influencés par des facteurs extérieurs. La décroissance radioactive suit une loi exponentielle et est décrite par l'équation 4, également connue sous le nom de loi de désintégration radioactive.

$$\ln \frac{N}{N_0} = -\lambda t \quad (4)$$

Les symboles utilisés dans l'équation (4) de désintégration radioactive sont les suivants :

- N_0 représente le nombre initial de noyaux
- N représente le nombre de noyaux à un moment donné t
- λ est la constante de désintégration propre à chaque isotope, mesurée en inverse de seconde (1/s)
- t représente le temps écoulé depuis le début de la désintégration jusqu'à un temps t quelconque, mesuré en seconde (s).

L'équation de désintégration radioactive (4) permet de déterminer la période de demi-vie d'un isotope radioactif ($t_{1/2}$), qui représente le temps nécessaire pour que le nombre de noyaux

instables diminue de moitié. Cette période est directement liée à la constante de désintégration λ et est unique pour chaque radionucléide, comme indiqué dans l'équation (5).

$$t_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} \quad (5)$$

III.5. L'unité de la radioactivité

La mesure de l'activité d'un échantillon radioactif correspond au nombre d'événements de désintégration par unité de temps. Cette grandeur physique est exprimée en Becquerel (Bq), 1 becquerel est l'activité d'une substance radioactive dans laquelle une désintégration par seconde a exactement lieu en moyenne.

Le Curie [Ci] était l'unité utilisée pour l'activité d'un radioélément, un curie correspondant à l'activité de 1g de Radium.

$$1 \text{ Bq} = 1 \text{ s}^{-1} \quad 1 \text{ Ci} = 37 \cdot 10^9 \text{ Bq}$$

D'autres unités de la radioactivité existent dans la littérature scientifique, plusieurs unités sont utilisées pour mesurer la radioactivité. Le tableau 7 ci-dessous, synthétise les principales unités ainsi que leurs équivalences respectives.

Tableau. 7. Unités de mesure des radioéléments et équivalence

Symbole	Unités	Equivalence
Bq	Becquerel	1 Bq = 1 désintégration/s
Ci	Curie	$3,7 \times 10^{10}$ désintégrations/s. ex : 1 Ci = activité de 1 gramme de $^{226}\text{Ra} = 3.7 * 10^{10}$
Sv	Sievert	1 Sv = 1 joule/kg
ME	Mache Einheit	1 ME = 13.37 Bq/l
Eman	Eman	1 Eman = 3.7 Bq/l

En général, la radioécologie s'intéresse aux activités émanant des radionucléides individuels d'un échantillon et non à l'activité globale d'un échantillon. Dans le présent travail, l'activité d'un radionucléide X par unité de poids ou de volume est définie comme l'activité volumique [Bq/m³; Bq/l ; mBq/l] donné par le radioélément X.

III.5.1. L'activité spécifique

Certains auteurs qualifient d'activité spécifique (SpA) toute indication d'activité d'un isotope (activité totale, activité partielle ou activité de radionucléides individuels) se rapportant à une unité de masse (poids). Pour déterminer l'activité spécifique d'un isotope radioactif (SpA), la formule suivante (équation 6) est couramment utilisée : (6)

$$SpA = \frac{\ln 2}{t_{1/2}} \cdot \frac{N}{M} \quad (6)$$

où : $T_{1/2}$ = période de demi vie en S
M = masse molaire
N = nombre d'atomes [atomes/mol]
SpA = activité spécifique du radionucléide X [Bq/g]

L'activité spécifique est une grandeur qui permet de convertir les valeurs d'une unité d'activité en une unité de masse, et inversement. Cela permet notamment de faire des comparaisons entre différents échantillons en termes d'activité radioactive, en tenant compte de leur quantité respective de matière présente. Par exemple, pour 1 Bq de ^{226}Ra (période de demi-vie= 1 600 ans, ou $5,05 \cdot 10^{10}$ s) (Arnold, 2017) :

$$1\text{Bq} = \frac{\ln 2}{5,05 \cdot 10^{10}} N^{226}\text{Ra} \quad (7)$$

$$N^{226}\text{Ra} = 7,28 \cdot 10^{10} \text{ [atomes]} \quad (8)$$

En terme de masse du Radium-226 (m)

$$m \text{ } ^{226}\text{Ra} \text{ [g]} = 7,28 \cdot 10^{10} \text{ [atomes]} \cdot \frac{226 \text{ [g]}}{6,022 \cdot 10^{26} \text{ [atomes]}} = 7,23 \cdot 10^{-1} \text{ [g]} \quad (9)$$

En utilisant l'équation 9, la valeur de l'activité spécifique du ^{226}Ra peut être calculée à $3,62 \cdot 10^{10}$ Bq/g. Toutefois, si l'on effectue les mêmes calculs pour 1 Bq de Radium de courte période (^{224}Ra , $t_{1/2}=3,66$ jours), la masse de cet isotope en grammes ne sera que de $1,7 \cdot 10^{-16}$ g tandis que son activité spécifique sera de $5,88 \cdot 10^{15}$ Bq/g. Ces résultats montrent que les valeurs de la période du radionucléide sont inversement proportionnelles aux valeurs de l'activité spécifique (Porcelli et al., 2014). En d'autres termes, un isotope radioactif avec une courte période aura une activité spécifique plus élevée qu'un isotope avec une période plus longue, pour une même quantité de matière.

III.5.2. Dose équivalente de radiation

Dans la radioprotection et en ce qui concerne l'exploitation des ressources aquatiques (comme les stations thermales, eau de boisson, etc.) qui possèdent une radioactivité, la mesure semi-empirique de la dose équivalente (H) [Sv] est souvent utilisée. La dose équivalente est une mesure des effets du rayonnement ionisant sur les tissus biologiques causés par une source de rayonnement. Elle est exprimée en termes de dose absorbée, c'est-à-dire l'énergie reçue par unité de masse, mais elle est ajustée en utilisant un facteur de pondération radiative sans dimension pour refléter le risque relatif du type de rayonnement impliqué (équation 10). Les facteurs de pondération des rayonnements pour le calcul de la dose de la radiation ont été déterminés à partir de données radiométriques, épidémiologiques et radiobiologiques. Ils représentent donc une évaluation de l'effet des rayonnements sur l'organisme.

$$H = D \cdot Q \quad (10)$$

H = dose équivalente [Sv]

D = dose absorbée (énergie transmise par masse) [Gy] [J/kg].

Q = facteur de pondération du rayonnement = $N \cdot q$

N = facteur pour les conditions d'exposition (exposition externe N = 1)

q = facteur d'évaluation pour le type de rayonnement

L'unité de dose équivalente est le Joule par kilogramme [J/kg]. Cependant, afin de souligner la différence avec la dose absorbée [1 J/kg = 1 Gy], le sievert [1 J/kg = 1 Sv] est utilisé comme unité de dose équivalente.

Les radionucléides présents dans l'eau radioactive sont ingérés par les êtres humains lorsqu'ils consomment de l'eau dans le cadre de leurs activités quotidiennes. Par conséquent, il est nécessaire de mesurer la dose équivalente pour les eaux afin d'évaluer le risque de la radiation, de plus les isotopes du Radium ont un coefficient de dose élevé (IAEA, 2006).

IV. Hydrogéochimie des radionucléides, teneur et mobilité radio-isotopique dans les eaux souterraines

La quantité de radioactivité présente dans les eaux souterraines varie selon différents facteurs et dépend également des différents radio-isotopes présents dans les chaînes de désintégration naturelles. La source ultime de radionucléides naturels est la croûte terrestre. Étant l'une des sources les plus abondantes de radioactivité naturelle, la série ^{238}U a été largement étudiée. La source la plus courante de radionucléides dans les eaux souterraines est la roche hôte et d'autres

solides présents dans les matériaux aquifères, qui peuvent libérer des radionucléides dans l'eau environnante. Dans les systèmes d'eaux souterraines, des déséquilibres importants sont observés, ce qui indique que dans ces systèmes, les interactions rocheuses induisent des fractionnements élémentaires et isotopiques importants (Osmond and Cowart, 1982). Cependant, les activités des radionucléides et de leurs précurseurs dans les eaux souterraines sont régies par des processus secondaires qui dépendent des caractéristiques hydrogéochimiques de l'eau. Ces processus comprennent la mise en solution, la dissolution, le transport et la mobilité de chaque radio-isotope.

Le comportement des radioéléments dans les eaux et dans leur milieu naturel est basé sur la géochimie, la demi-vie ainsi que la nature de leur environnement. Pour étudier le comportement des éléments radioactifs Ra et Rn, il faut comprendre le comportement des éléments ascendants, qui sont l'Uranium et le Thorium pour le cas de notre étude. Bien que les propriétés physiques et chimiques de ces radioéléments soient bien connues, il est difficile de prédire le comportement et la mobilisation dans des systèmes naturels plus complexes tels que le système aquatique souterrain. Le transfert ou la disposition d'un atome de la série de désintégrations radioactive dans les systèmes d'eaux souterraines dépend de nombreux facteurs impliquant les propriétés chimiques et physiques de l'élément.

Outre les niveaux de concentration, le présent sous-chapitre aborde le comportement hydrogéochimique de l'uranium, du thorium, du Radium et du Radon dans les eaux souterraines

IV.1. Les radionucléides comme traceurs environnementaux

Les radionucléides ont été utilisés comme traceurs pour mieux comprendre les mécanismes d'interaction eau/roche et le cycle de l'eau dans les systèmes hydrologiques continentaux. L'une des applications les plus critiques des radionucléides est la datation des eaux souterraines. L'estimation de l'âge des eaux souterraines est un élément clé pour mieux comprendre leur écoulement et pour évaluer les taux de recharge modernes des aquifères. Cette estimation est souvent réalisée en utilisant des modèles hydrogéologiques, et elle peut être utile pour plusieurs applications, notamment la gestion de l'eau d'un aquifère et la compréhension des processus géochimiques dans les aquifères (Moore, 1996 ; Phillips, 2013 ; Sturchio et al., 2004 ; Patterson et al., 2005 ; Sultan et al., 2019).

Plusieurs isotopes peuvent être employés comme indicateurs pour déterminer l'âge des eaux souterraines sur une variété d'échelles temporelles. Pour être considéré comme un traceur idéal pour les eaux souterraines, un isotope doit se déplacer de la même manière que les molécules

d'eau (Torgersen et al., 2013). Un tel traceur devrait se comporter de manière conservatrice pendant l'écoulement des eaux souterraines et devrait reproduire les voies d'écoulement complexes et le mélange des eaux souterraines rechargées à différentes périodes. Il convient de noter que les isotopes radioactifs utilisés comme traceurs pour dater les eaux souterraines doivent subir une variation de leur concentration au fil du temps, en partant d'une concentration initiale (valeur de recharge) jusqu'au point où ils peuvent être prélevés pour analyse (Torgersen et al., 2013).

Les radionucléides ont été largement utilisés pour estimer les taux de transport et les temps de séjour dans les systèmes aquatiques. Les âges des eaux souterraines peuvent être estimés à l'aide de l'équation de décroissance radiométrique et de la décroissance radioactive d'un radionucléide à partir de la concentration initiale dans l'eau de recharge. Parmi les divers traceurs isotopiques, le Chlore-36 (^{36}Cl) s'est avéré être une méthode robuste pour estimer les âges des anciennes eaux souterraines (Patterson et al., 2005 ; Sultan et al., 2019). Le ^{36}Cl a également été utilisé pour dater les eaux contenant des retombées d'essais d'armes nucléaires (Davis et Schaeffer, 1955). L'avancement des technologies analytiques, notamment après le développement de la spectrométrie de masse a permis des mesures précises des concentrations ultra-faibles de ^{36}Cl dans les eaux souterraines sur des échantillons de la taille d'un milligramme (Elmore et al., 1979). Bentley et al. (1986) ont fourni les premières tentatives réussies d'estimation de l'âge des anciennes eaux souterraines du Grand Bassin artésien d'Australie et de l'aquifère de la rivière Milk au Canada.

Le Radium s'est également avéré efficace pour dater les eaux souterraines. Les rapports d'activité des radio-isotopes (ex. $^{224}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$) ont été utilisés avec succès pour contraindre les estimations de l'âge de l'eau et pour approximer les temps de résidence dans les eaux côtières. Eller et al. (2013) ont utilisé ce modèle, basé sur les rapports d'activité du Radium, pour déterminer l'âge des eaux de la région d'Andrew Bay en Floride (États-Unis).

IV.2. Hydrogéochimie de l'U et Th dans les eaux

La connaissance des facteurs qui limitent la solubilisation de l'uranium est essentielle. Ce dernier est l'élément le plus lourd présent dans toutes les substances terrestres (roches, sol, eau, etc.) à des concentrations variables. Il se désintègre en plusieurs radioisotopes à vie courte et longue, notamment le Radium et le Radon. Trois isotopes d'uranium sont naturellement présents : ^{234}U , ^{235}U et ^{238}U . La concentration d'uranium dans les eaux souterraines dépend de la lithologie, de la géomorphologie et d'autres conditions géologiques de la région.

Les propriétés générales de l'uranium, du thorium et du polonium sont métalliques, tandis que le Radium est un alcalino-terreux et le Radon est un élément gazeux. Le comportement chimique d'un élément dépend non seulement de sa structure, mais aussi de son environnement chimique. L'uranium possède six états de valence, ils sont : U^{+1} , U^{+2} , U^{+3} , U^{+4} , U^{+5} et U^{+6} . Les plus importants sont U^{+4} et U^{+6} (Langmuir, 1978).

Les complexes d'uranium solubles, par ex. l'uranyle U^{4+} (IV), sont facilement produits dans des environnements oxydants, alors que dans des environnements souterrains réducteurs, l'uranium, et en particulier l'ion uranyle, est facilement précipité ou adsorbé sur des composés organiques (De Vivo et al 1984 ; Gascoyne, 1992). Cet élément, en état oxyde U^{6+} (VI), prédomine dans les milieux oxydés (eaux de surface). Il forme facilement des complexes avec les carbonates, les phosphates ou encore des sulfates (Langmuir, 1978). Il est aisément transporté dans le cycle hydrologique (Gascoyne, 1992), dans des conditions d'eaux possédant un potentiel de redox négatif et uniquement présent en U^{4+} (IV) (dans les milieux réduits, eaux profondes où l'oxygène est absent). Même une teneur élevée en uranium dans la roche traversée par un écoulement souterrain n'entraîne guère d'augmentation de la teneur en U des eaux souterraines dans de telles zones réductrices (Cramer et al., 1988). La teneur en U des eaux souterraines oxydantes est normalement comprise entre 0,1 et 1000 ppb (Osmond & Cowart, 1976).

La solubilité de l'uranium est fortement influencée par les conditions d'oxydation et de réduction. Baertschi & Keil (1992) ont réalisé des expériences de lixiviation avec de l'uraninite en poudre (UO_2), qui en plus de l' U^{+4} contient toujours de l' U^{+6} facilement mobilisable. Les résultats montrent que l'oxygène dissous seul ne peut pas augmenter davantage la solubilité, il nécessite évidemment encore un médiateur redox adapté tel que Fe^{2+}/Fe^{3+} . D'autre part, le CO_2 peut dissoudre une grande partie de l'uranium hexavalent existant, ce qui signifie que des quantités considérables d'uranium peuvent être rejetées dans les eaux souterraines même dans des conditions anoxiques. Puigdomenech & Bruno (1988) ont également trouvé des solubilités relativement élevées pour les composés U^{4+} dans des conditions modérément acides à alcalines, réductrices.

L'uranium libéré de la structure rocheuse est généralement transporté sous forme de complexes d'uranyle, mais selon Dearlove et al., (1991), jusqu'à 80% de la charge d'uranium dans les systèmes aquatiques est liée à des colloïdes organiques (c'est-à-dire des particules dont la taille varie de 1 à 1 000 nm).

La source principale de l'Uranium est la croûte océanique avec ses sédiments d'eaux profondes. D'autres sources importantes sont les phosphorites riches en matières organiques et les sédiments de la marge continentale, ainsi que les sédiments métallifères et carbonatés et les sédiments des bassins anoxiques (Veeh 1967 ; Rosholt 1982). Environ 72 % des réserves d'uranium connues se trouvent dans les sédiments (Füchtbauer et al. 1988). Ces sédiments peuvent à leur tour agir comme sources secondaires d'uranium dans le cycle géochimique. Les sources d'uranium économiquement importantes sont les oxydes d'uranium, l'uraninite, la pechblende et les silicates. On pense qu'ils se sont formés par précipitation dans des solutions hydrothermales ou des eaux souterraines. Les minerais d'uranyle secondaires tels que les vanadates, les phosphates et les silicates sont généralement formés par altération chimique des minerais (Osmond et al. 1983).

Il existe six isotopes du Thorium dans les trois séries radioactives : ^{227}Th , ^{228}Th , ^{230}Th , ^{231}Th , ^{232}Th , et ^{234}Th , l'état +4 est l'unique état d'oxydation, il est quasiment insoluble dans les eaux (Gascoyne, 1992).

Dans les roches, le Thorium est présent sur des sites similaires à l'Uranium, sous forme de trace dans les minéraux de phosphate, d'oxyde et de silicate. Le Thorium a une très faible solubilité dans presque tous les environnements aqueux en raison du potentiel ionique élevé du Th^{4+} . Dans l'eau, la mobilité du Thorium est relativement restreinte (Wright, 1972), son transport dans les eaux ne peut être que par le mouvement de la matière particulaire sur laquelle le thorium est adsorbé.

D'une façon générale, le comportement de l'Uranium et du Thorium, et au sens large celui des actinides dans l'environnement, dépend de plusieurs paramètres (Lieser et al., 1990) :

- L'état d'oxydation, qui est en fonction du potentiel d'oxydo-réduction (Eh).
- L'hydrolyse, qui dépend de l'oxydation et du pH.
- La solubilité, qui dépend du type de solide formé, de la formation de complexes et de la formation de colloïde.
- la formation de colloïde, qui est en fonction de la concentration de l'élément, de la présence de colloïde et de l'adsorption de ces éléments sur les colloïdes.
- Des effets de filtration, qui dépend de la taille de la matière particulaire, portée par les actinides, et de la taille des pores dans les sédiments.

IV.3. Propriétés hydrogéochimiques du Radium et du Radon

IV.3.1. Le Radium

Le Radium dans les roches est généré par la désintégration de l'Uranium. Il se trouve dans les trois chaînes de décroissance radioactives, ^{238}U , ^{232}Th et ^{235}U , qui se désintègrent par différentes radioactivités : alpha α , beta β et gamma. Ces chaînes se terminent finalement par la formation d'un isotope stable de Plomb, ^{206}Pb , ^{208}Pb et ^{207}Pb respectivement. Il y a quatre isotopes naturels de Radium avec une masse de ^{223}Ra (demi-vie de 11,4 jours), ^{224}Ra (demi-vie de 3,66 jours), ^{226}Ra (demi-vie de 1600 ans) et ^{228}Ra (demi-vie de 5,75 ans) (Cf. *fig. 45 ci-dessus*). Tous les isotopes du Radium sont radioactifs et se retrouvent dans divers milieux tels que les sols, les roches, les sédiments, les eaux de surface, notamment dans les lacs, les rivières, les mers, les océans, et les eaux souterraines. Le ^{226}Ra est le plus abondant et le plus étudié en raison de sa longue demi-vie (1600 ans).

Tous les nucléides de Radium connus sont des émetteurs α , à l'exception de ^{228}Ra qui est un émetteur β . Le Radium est un métal extrêmement rare, avec une abondance moyenne de 1ppm dans les roches de la croûte terrestre (Greenwood & Earnshaw 1990). ^{228}Ra et ^{226}Ra ont des demi-vies suffisamment longues pour présenter un intérêt lors de l'examen des processus géochimiques. Pour certaines questions particulières d'hydrogéologie, les deux isotopes naturels du Radium, à courte durée de vie, ^{224}Ra et ^{223}Ra , sont également utilisés.

La géochimie du Radium est relativement connue, du fait de son état de valence singulier, et que le comportement du Radium est souvent similaire à celui des autres éléments alcalino-terreux.

Dans les eaux douces, le Radium se présente sous forme d'ions Ra^{2+} ou de complexes inorganiques solubles tels que RaCl^+ , RaOH^+ , RaSO_4^0 et RaCO_3^0 . Cependant, sa concentration dans les eaux naturelles est généralement trop faible pour former des composés solides insolubles. Le Radium ne possède qu'un seul état d'oxydation en solution (+2) et ses propriétés chimiques sont similaires à celles du baryum et des autres métaux du groupe II du tableau périodique tels que Be, Mg, Ca et Sr. Sa présence est plus importante dans les milieux très minéralisés (Langmuir et Riese, 1985). Dans les eaux souterraines, la mobilité du Radium est particulièrement déterminée par les processus d'adsorption-désorption sur les surfaces des aquifères et l'ion Ra^{2+} est modérément soluble, peut précipiter sous forme de sels peu solubles (sels de sulfate, de carbonate et de chromate), mais en raison de la faible abondance naturelle, la concentration de Radium dans l'eau est principalement contrôlée par la co-précipitation avec d'autres éléments et sur des surfaces actives de toutes sortes (Ames et al., 1983).

Le Radium et le Baryum ont des rayons ioniques hydratés proches Ra^{2+} (3.98 Å) et Ba^{2+} (4.04 Å), ce qui entraîne un comportement chimique similaire dans de nombreuses situations. En conséquence, le Radium peut précipiter conjointement avec le baryum (Porcelli et al., 2014). Les concentrations de ces deux éléments peuvent être corrélées dans les eaux d'origine thermique comme le cas du Bassin de Lodève dans le Massif central en France (Toulhoat et Beaucaire, 1987). Rubin et Macdougall (1990) proposent d'utiliser le Baryum comme substitut stable du Radium, d'autres auteurs utilisent le Baryum comme l'analogue stable du Radium dans les processus pétrogénétiques.

Plusieurs paramètres influencent et contrôlent les teneurs en Radium et en Uranium dans les eaux souterraines, dont les deux principaux sont le type de roche à travers lequel l'eau s'écoule et les caractéristiques hydrochimiques de l'eau. La migration des radionucléides dans les eaux est retardée par différents procédés, comme l'adsorption à la surface de la roche, la diffusion dans la matrice de la roche, les échanges ioniques avec les minéraux argileux et la précipitation. Leur quantité dans l'eau souterraine dépend de leurs caractéristiques chimiques, du pH, du potentiel redox, de la salinité et des éléments dissous présents. Les processus qui peuvent réguler les activités des radio-isotopes naturels sont liés à leur dissolution, leur transport et leur mobilité. Ces processus ont été résumés par Molina Porras (2017) et sont illustrés par la figure 47. Ces processus incluent le recul alpha, les interactions, la précipitation et désintégration radioactive, ainsi que le transport de radionucléides.

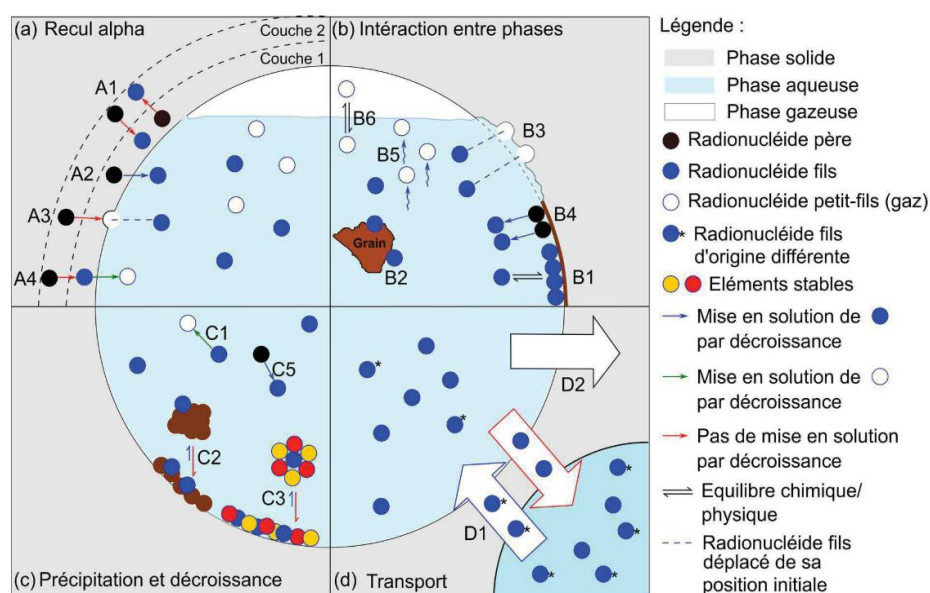


Fig. 47. Schéma des principaux processus impliqués dans la dissolution et la migration des radioéléments par : (a) recul alpha, (b) les interactions (c) précipitation et désintégration radioactive et (d) transport de radionucléides (Arnold, 2017).

Les radio-isotopes naturels se dissolvent selon différents processus tels que le recul alpha (Fig. 47a), la dissolution des roches ou la lixiviation (Fig. 47b, B3), la formation en solution (Fig. 47b, B1) ou par recul alpha (Fig. 47b, B4) à partir de la désintégration du radionucléide père. Leur mobilité dans la phase aqueuse est déterminée par les interactions avec les surfaces des solides d'aquifères (sédiments, roches, etc.) (Fig. 47b, B1 et B2). Les processus de précipitation et de co-précipitation (Fig. 47c, C2 et C3), propagation et diffusion (Fig. 47b B5), désintégration radioactive (Fig. 47c, C1 et C5) ainsi que l'équilibre entre les phases aqueuses et gazeuses (dans le cas des gaz tels que le Radon) influencent également la dissolution et la migration des radionucléides. Le transport des radionucléides est déterminé par des processus hydrodynamiques tels que l'advection (Fig. 47d D2) et le mélange avec d'autres masses d'eau d'origines différentes (Fig. 47d D1). Les propriétés physiques et chimiques de l'eau, telles que le pH, la température, le potentiel redox, la minéralisation totale et les concentrations de divers éléments, jouent également un rôle important dans la dissolution et la migration des radionucléides.

IV.3.2. Paramètres influençant la teneur en Radium des eaux

Les concentrations des isotopes de Ra dans les eaux souterraines sont souvent liées à la composition lithologique (e.g carbonates granites, sables), où la roche encaissante agit comme la principale source de Ra (Porcelli, 2008; Vinson et al., 2012)

Dans certaines mesures, la quantité de flux de l'eau souterraine peut influencer la teneur en Radium des eaux, par exemple dans un système où l'écoulement est rapide, l'eau souterraine a un temps de résidence court dans l'aquifère, ce qui lui confère une plus faible concentration de Radium que dans un aquifère faiblement transmissif. L'eau qui circule rapidement a un temps de contact plus faible avec les différentes sources de Radium (Humphreys, 1987). Un mouvement lent des eaux va donc permettre d'entraîner une très grande quantité de Radium à forte demi-vie (^{226}Ra), alors qu'au même moment, la migration des isotopes à plus faible demi-vie va être limitée.

La quantité de dissolution et de disposition de baryum, de calcium et la demi-vie influencent le temps de résidence du ^{226}Ra en solution ; l'activité du ^{226}Ra dissous dans l'eau provenant de l'effet de recul semble augmenter avec le temps et devient constante lorsqu'elle atteint l'équilibre radioactif (environ 800 ans pour le ^{226}Ra). Cependant, les effets d'échange de calcium entre la solution et la matrice carbonatée et la co-précipitation du Radium avec le calcium peuvent empêcher l'atteinte de cette valeur d'équilibre dans la solution. Les fortes teneurs en ^{226}Ra sont

généralement observées dans les eaux souterraines évoluées, par exemple dans les eaux géothermales ou les gisements salifères (Bloch et Key, 1981 ; Andrew et al., 1989), c'est donc le cas d'eaux fortement chargées en éléments, le Radium peut être très mobile (Gascoyne, 1992).

La distance de transport de Radium dans l'eau souterraine dépend de la durée de sa demie-vie et du type d'eau. Des eaux riches en chlorures vont maximiser cette distance, par contre les eaux sulfatées et riches en sulfates (avec des faibles teneurs en chlorures) vont assurer virtuellement un transport négligeable du Radium (Gascoyne, 1992).

La concentration chimique du Radium dans l'eau semble être relativement liée à l'augmentation de la salinité, à condition qu'une quantité suffisante d'ions baryum et calcium soit présente en solution (Andrews et al, 1989). Ces observations ont généralement été remarquées dans les études de cas d'un cours d'eaux se jetant dans la mer (Moore et Scott, 1986).

Dans les eaux souterraines des terrains non salifères (argileux, gypseux), le Radium ne migre en général pas loin de la zone où il a été produit, à cause de sa probabilité d'être adsorbé (Krishnaswami et al, 1982) sur les argiles par exemple, il peut s'échanger avec les ions de la matrice de l'aquifère et peut aussi co-précipiter. Les faibles concentrations de Radium dans l'eau souterraine peuvent être attribuées à l'adsorption du Radium sur les hydroxydes de fer et de manganèse, ainsi qu'à la co-précipitation avec la barytine et le gypse (Beaucaire, 1987).

Les eaux thermales et salées contiennent généralement des concentrations plus élevées de ^{226}Ra que les eaux douces en raison de l'influence de facteurs tels que la température et la minéralisation sur l'adsorption ou la désorption de Ra sur les surfaces de l'aquifère. En revanche, les eaux karstiques continentales, qui sont souvent neutres et peu minéralisées en bicarbonates, sont moins affectées par ces conditions extrêmes (e.g. Guerrero et al., 2016; Matic et al., 2013). Cependant, les variations des conditions redox peuvent également affecter la capacité d'adsorption des oxydes de fer et de manganèse, comme l'ont montré différentes études (Gonneea et al., 2008; Szabo et al., 2012; Vinson et al., 2009; Zapecza and Szabo, 1988).

IV.3.3. Le Radon

Parmi les sources de rayonnements ionisants naturels, celle du Radon, sous forme de gaz, est la plus importante. Le Radon (^{222}Rn) est un gaz noble formé à partir du Radium (^{226}Ra), qui est un produit de désintégration de l'uranium (^{238}U). Les autres produits de désintégration de l'uranium comprennent les isotopes thoron (^{220}Rn) et actinon (^{219}Rn). Le Radon est un gaz alpha émetteur et la source la plus importante de rayonnements ionisants d'origine naturelle. Il a une demi-vie

de 3,8 jours et est le gaz rare le plus lourd, avec un numéro atomique de 86. Bien qu'il soit chimiquement presque inerte, il est très soluble dans l'eau (Clever, 1985). À l'état gazeux, le Radon est incolore, inodore et insipide. Des expériences ont montré que les ions fluorures dans l'eau, en particulier à faible pH, affectent fortement le transport du ^{222}Rn dans l'eau, avec une diminution du transfert/exhalation du Radon et l'augmentation des concentrations en fluorure (Salih et al., 2004). Parmi les éléments gazeux de la chaîne de désintégration, seuls les isotopes du Radon peuvent s'éloigner par convection et diffusion de leur lieu de formation et migrer. En moyenne, l'atmosphère terrestre contient 10 à 19 % de Radon.

IV.2.3.1. Origine du Radon, ses applications et sa teneur dans les eaux

IV.2.3.1.1. Origine

Le Radon issu du Radium 226 est également fortement présent dans les eaux souterraines, tout comme le Radium lui-même. De plus, le Radon a une affinité élevée pour les liquides denses non aqueux, où sa solubilité est environ 40 fois supérieure à celle dans l'eau (Schubert et al., 2001).

L'origine du Radon et du Thoron dans la croûte terrestre provient directement des isotopes du Radium et de leurs produits de désintégration distribués en quantités infimes dans le sol (Pressyanov et al., 1995 ; Hussain et al., 1999). Une fois que les isotopes du gaz sont produits, ils migrent à une distance significative du site de génération, même pendant leurs courtes demi-vies. Le Radon 222, ayant une demi-vie courte de 3,825 jours, se transforme entièrement en Polonium-218 (^{218}Po) après environ 20 jours. Cela implique que l'eau qui transporte le Radon de sa source jusqu'au point de mesure ne dépasse pas 20 jours.

IV.2.3.1.2. Applications

Le radio-isotope Radon (^{222}Rn) est de plus en plus utilisé comme traceur environnemental en hydrologie, en raison de son omniprésence dans l'environnement (Schubert et al., 2008) et de son comportement chimiquement et biologiquement inerte (Treutler et al., 2007). Le potentiel élevé du Radon pour être utilisé comme traceur aqueux réside également dans sa capacité à tracer les voies de migration des eaux souterraines (Hoehn et Gunten, 1989). Plusieurs études dans le monde ont confirmé son applicabilité pour étudier le processus de migration des eaux souterraines ou les interactions entre les eaux souterraines et les masses d'eau de surface hydrologiquement connectées, comme les rivières et les lacs (Schubert et al., 2008). En outre, les mesures de l'activité du Radon dans l'air du sol ou les eaux souterraines avant et pendant les

événements sismiques ou volcaniques peuvent fournir des résultats tangibles pour prévoir les tremblements de terre et les éruptions volcaniques (Kharatian et al., 2002).

IV.2.3.1.3. Teneur en Radon dans les eaux

La concentration de ^{222}Rn dans les eaux souterraines est fortement influencée par l'environnement géologique local, les concentrations d'éléments parents du Radon (notamment l'uranium et le Radium) dans les roches environnantes et la composition de ces dernières. La teneur en Radon dans les eaux souterraines est contrôlée par plusieurs aspects, tels que la lithologie du sous-sol (densité et porosité) et la macrostructure (e.g. fracture et linéaments) de l'aquifère (Sukanya et al. 2021). Par conséquent, l'activité tectonique ou volcanique (failles lors de tremblements de terre, intrusions magmatiques) peut être une source interne de Rn dans certains cas. Les concentrations en ^{222}Rn peuvent également être affectées par d'autres facteurs tels que la solubilité, les processus de dégazage, la configuration du compartiment aquifère, le débit, le temps de séjour et l'infiltration d'eau (Ball et al., 1991). De plus, la présence de dépôts secondaires de Radium sur les surfaces par adsorption peut générer du Radon qui se déplace facilement dans l'eau, augmentant ainsi sa concentration (Gainon et al., 2007; Voronov, 2004). Ces dépôts se forment souvent à l'interface eau-roche, entraînant des facteurs d'émanation élevés et des concentrations élevées de Radon.

Étant donné que le ^{222}Rn est le fils direct du ^{226}Ra , un niveau élevé de ^{226}Ra dans le substratum rocheux devrait générer des concentrations importantes de ^{222}Rn dans l'eau, qui migre ensuite loin de la source. Les eaux souterraines peuvent transporter le ^{222}Rn sur de grandes distances en fonction du débit, par exemple, à des débits compris entre 0,5 et 1,0 mètre par jour, Rn pourrait être transporté sur environ 20 à 40 m avant d'être complètement décomposé. Des concentrations élevées de ^{222}Rn pourraient conduire à des niveaux détectables de ^{210}Pb et de ^{210}Po . Donc, dans les aquifères qui ont des concentrations élevées en ^{210}Po , les niveaux de ^{222}Rn sont normalement également élevés.

Dans les eaux souterraines, comme mentionné précédemment, l'uranium n'est généralement pas en équilibre avec ses produits de désintégration. Les raisons de ce comportement sont principalement dues aux différences de mobilisation dans les eaux souterraines et aux processus physico-chimiques tels que les demi-vies physiques de ces nucléides, leur transport entre les systèmes roche et eau et les processus chimiques de l'eau (par exemple, les processus de sorption/désorption ; capacités d'échange).

Il existe des cas où les fortes concentrations en ^{222}Rn dans les sources thermales carbonatées ne sont pas dues à l'infiltration du radionucléide à travers le sol. Dans ces situations, l'accumulation de l'élément parent du Radon (^{226}Ra) en profondeur est le modèle le plus probable, résultant de la formation d'hydroxyde ferrique accompagnant la co-précipitation du Radium (Surbeck, 2005).

Le Radon peut se dissoudre dans les eaux souterraines et être libéré dans l'air intérieur lors d'activités ménagères telles que le bain, la vaisselle et le lavage des vêtements. Souvent, Il y a un risque pour la santé lorsque le Radon s'accumule dans l'air intérieur. Ainsi, l'exposition au Radon d'origine hydrique peut se produire par ingestion et inhalation. Lorsqu'il est inhalé pendant des périodes continues, il peut provoquer un cancer du poumon. L'un des risques associés à l'ingestion d'eau contenant du Radon et des descendants du Radon est le cancer de l'estomac et du côlon et d'autres cancers d'organes (EPA, 2000).

Les eaux souterraines ayant des concentrations élevées en Radium et en Uranium augmentent le risque de présence de Radon. Cependant, sa concentration est faible dans la plupart des eaux, bien que dans certains cas, leur concentration en Radon peut-être plus élevée. Dans ce dernier cas, la nécessité d'un traitement de l'eau ou des limitations dans son utilisation à des fins de consommation s'impose (Hess et al., 1985).

V. Conclusion

En conclusion, le Radium et le Radon sont des éléments radioactifs qui peuvent être présents dans les matrices environnementales comme le sol, la roche, l'atmosphère et les eaux souterraines. D'après la littérature, certains processus peuvent affecter les concentrations de ces éléments. La solubilité, les processus de dégazage et la configuration du compartiment aquifère sont également des facteurs qui influencent les concentrations de ces éléments radioactifs dans les eaux souterraines.

Le Radon, en particulier, est de plus en plus utilisé comme traceur environnemental en hydrologie et en hydrogéologie, en raison de son comportement chimiquement et biologiquement inerte et de sa capacité à tracer les voies de migration des eaux souterraines. Néanmoins, l'accumulation du Radon dans l'air intérieur peut présenter un risque pour la santé en cas d'exposition prolongée.

En ce qui concerne le Radium, son accumulation dans les aquifères peut se produire dans certaines sources thermales carbonatées en raison de la formation d'hydroxyde ferrique accompagnant la co-précipitation du Radium. La présence du Radium et de ses descendants dans

l'eau peut également présenter un risque pour la santé, en particulier lorsqu'ils sont ingérés et peuvent causer divers types de cancers d'organes, notamment le cancer de l'estomac et du côlon.

En résumé, l'étude des concentrations du Radon et du Radium dans les eaux souterraines et les sources thermales peut fournir des informations précieuses sur les processus géologiques, hydrologiques et géochimiques ayant affectés la région.

L'objectif principal de ce travail étant de comprendre le comportement hydrogéochimique de ces deux éléments radioactifs (Radon et Radium) dans les systèmes hydrothermaux, cette étude est essentielle pour évaluer le risque radiologique lié à l'utilisation des eaux thermales à des fins diverses. Les résultats contribueront à une meilleure compréhension de la répartition de ces éléments dans les eaux souterraines de la région étudiée et des facteurs géologiques, hydrogéologique et hydrochimique qui peuvent influencer leur présence. Ces données seront utilisées pour améliorer les mesures de protection de la santé publique et pour élaborer des stratégies de gestion de l'eau visant à minimiser l'exposition humaine à ces éléments radioactifs potentiellement dangereux.

Chapitre IV

Section 2

Principes et Méthodologies d'analyse

I. Introduction

Dans l'étude de la radioactivité et de la radioécologie environnementales, la méthodologie d'analyse de la radioactivité et la détection des rayonnements sont essentielles. La capacité de détecter les rayonnements est nécessaire pour comprendre l'impact de la radioactivité sur l'environnement et mesurer la quantité de radioactivité présente dans un échantillon donné.

La détection et l'analyse de la radioactivité sont des outils clés dans la gestion des risques liés à la radioactivité et la protection de la santé et de l'environnement, ainsi que d'évaluer son impact potentiel. Les détecteurs de rayonnement comprennent un détecteur, une unité de traitement du signal et un affichage de sortie tel qu'un compteur ou un spectromètre. Le principe de fonctionnement de base des différents détecteurs de rayonnement nucléaire est similaire. Le rayonnement pénètre dans le détecteur, interagit avec les atomes du matériau du détecteur en perdant une partie ou la totalité de son énergie, et libère un grand nombre d'électrons d'énergie relativement faible à partir des orbites des atomes. Cette partie décrit la méthode analytique pour l'analyse des substances radioactives présentes dans les eaux thermales, et une brève description des détecteurs utilisés dans cette étude, pour la détection du Radium et du Radon dans les eaux thermales du nord-ouest algérien, sera fournie dans ce sous-chapitre.

Les concentrations de radioactivité présentes dans les éléments naturels sont si faibles qu'il est nécessaire d'utiliser des méthodes analytiques extrêmement sensibles pour leur détection. C'est pourquoi la détermination des éléments radioactifs dans les échantillons environnementaux (eau, roche, etc.) est assez difficile, étant donné la présence de constituants inconnus et d'interférences causées par les différentes espèces chimiques présentes. Parfois, la concentration de certains éléments dans les échantillons environnementaux est extrêmement faible, à tel point qu'elle est souvent proche, voire même en dessous, des limites de détection des techniques conventionnelles. Pour estimer quantitativement les activités et les concentrations à de si faibles niveaux, les méthodes analytiques doivent être sélectionnées selon certains critères, tels que :

- Haute sensibilité à faible concentration
- Bonne précision et exactitude
- Haute sélectivité
- Simple à utiliser et à entretenir
- Problème de contamination minimale
- Système de purge
- Capacité multi-élémentaire simultanée
- Grand débit d'échantillons

- Large Plage dynamique linéaire

En plus des critères mentionnés précédemment, la méthode doit être rapide, pouvoir traiter un grand nombre d'échantillons, prendre en compte la nature de l'échantillon, être économiquement de moins coût, et utiliser des instruments et des méthodologies disponibles. Dans le cadre de cette étude, les techniques d'analyse du laboratoire d'hydrogéologie d'Avignon (France) répondent à la plupart de ces critères pour l'analyse et offrent des sensibilités souvent supérieures à celles obtenues avec d'autres méthodes.

En effet, les techniques méthodologiques de mesure des isotopes de Radium dans l'eau varient en fonction de l'isotope à analyser ainsi que de leur teneur, concentration ou activité. En ce qui concerne les isotopes du Radon, les techniques existantes pour le mesurer se basent principalement sur le dégazage en boucle fermée du Radon, suivi d'une détection soit dans l'air ambiant soit par scintillation liquide. Il convient de souligner que le choix de la méthode d'échantillonnage et du protocole doit être adapté à l'instrument d'analyse utilisé, ce qui constitue un critère important dans la sélection de la méthode d'analyse appropriée.

II. Technique d'échantillonnage, instrumentation et méthode analytique (Laboratoire d'Hydrogéologie d'Avignon, LHA)

II.1. Échantillonnage du Radium et du Radon de l'eau

Il y a plusieurs méthodes pour prélever des échantillons d'eau souterraine destinée à ce type d'analyse. Habituellement, des échantillons de 0,5 à 3 L d'eau souterraine salée suffisent pour mesurer le Radium, 10 à 50 L dans les eaux souterraines à faible salinité peuvent être nécessaires (Moore, 2008). Lors de notre campagne d'échantillonnage sur le terrain, le volume d'eau prélevé pour chaque échantillon est de l'ordre de 20L, afin de pouvoir analyser les quatre isotopes du Radium. Les échantillons sont collectés et filtrés le même jour à travers des colonnes (cartouches PVC) qui contiennent des fibres noires en dioxyde de manganèse (MnO_2), qui fixent les isotopes du Radium, l'Actinium 227 ainsi que les isotopes du Thorium avec un débit $\leq 1,0$ L/min. La méthode originale consiste à faire passer à un débit bien ajusté une grande quantité d'eau à travers une cartouche contenant des fibres imprégnées de MnO_2 , permettant l'extraction du Radium total dans l'eau avec une grande efficacité (Moore and Reid, 1973 ; Kelly and Moran, 2002)

Environ 15g de fibre de MnO_2 sèche a été utilisé pour chaque échantillon et à faible débit, la fibre manganèse piège le Radium par adsorption dans les particules d'oxyde de manganèse (Moore, 1976). Une fois la filtration terminée, les fibres sont pressées à la main afin d'éliminer l'air

comprimé. Le poids net de la fibre humide est contrôlé jusqu'à ce qu'il atteigne deux fois le poids de la fibre sèche avant la filtration. Parallèlement, des échantillons de 2L pour chaque source thermique ont été prélevés pour analyser le Radon. L'échantillonnage pour tous les éléments radioactifs a été fait en même temps.

II.2. Mesure du ^{224}Ra et ^{223}Ra par le RaDeCC

II.2.1. Description de la technique de détection (RaDeCC)

L'équipement d'analyse utilisé, est un instrument de comptage de coïncidence (RaDeCC Radium Delayed Coincidence Counter) développé par Moore et Arnold (1996). Cet instrument est utilisé pour mesurer les isotopes de Radium de courte demi-vie : Radium-223 (11.43 jours) et Radium-224 (3.66 jours) ainsi que l'Actinium-227 (^{227}Ac) (via la mesure du ^{223}Ra , fils de l' ^{227}Ac) (Moore 2008) dans l'échantillon d'eau. D'une façon générale, ce système est basé sur la mesure de signaux à coïncidence retardés générés par la décroissance radioactive du Radon en Polonium (qui a une très courte durée de vie) puis celle du Polonium en Plomb dans la cellule de scintillation. Les activités ^{223}Ra sont déterminées à travers l'analyse des désintégrations alpha générées par ses fils : le couple ^{219}Rn - ^{215}Po , et les activités ^{224}Ra sont, elles, déterminées par l'analyse du couple ^{220}Rn - ^{216}Po . Ce système a été utilisé en 1996, par Moore et Arnold pour la détermination des activités du Radium dans les échantillons d'eaux et est actuellement utilisée pour la détection des activités de Radium à courte demi-vie (^{223}Ra et ^{224}Ra).

Dans ce système, l'analyse de ces isotopes se fait à travers un circuit fermé, commençant par l'ouverture d'une pompe permanente afin de faire circuler le gaz d'Hélium à un débit constant (5-7 l/min), au moyen d'une chambre recouverte d'un scintillateur solide, couche de sulfure de Zinc phosphorescent (ZnS) (Fig. 48), sur laquelle les désintégrations alpha vont réagir en créant des impulsions électriques reliées à un tube photomultiplicateur. Ce dernier permet d'enregistrer les signaux créés par la désintégration. Le flux d'hélium sépare les isotopes de Radon ^{223}Ra et ^{224}Ra (^{219}Rn et ^{220}Rn , respectivement) des fibres de MnO_2 (dioxyde de manganèse) et les transporte vers une chambre de détection par scintillation dans laquelle ils se désintègrent en Polonium (^{216}Po , ^{215}Po). Cela est dû aux propriétés de l'hélium qui peut faiblement atténuer les trajectoires des particules alpha, améliorant ainsi le rendement de la détection (Griffin et al., 1963). Toute particule alpha détectée dans la cellule à scintillation produit un signal qui est conduit vers un registre de comptage total ainsi que vers les circuits 219 et 220. Le canal total enregistre chaque événement de décroissance (cpm total).

Le principe de cet équipement est basé sur l'enregistrement de tous les signaux de la désintégration dans les canaux en fonction du temps, reflétant les demi-vies des produits de désintégration dans les chaînes de désintégration relatives (Moore et Arnold 1996). Actuellement, cette méthode est la plus couramment utilisée pour mesurer les isotopes à courte demi-vie du Radium. La figure 48 représente le circuit fermé utilisé par RaDeCC pour mesurer les isotopes ^{223}Ra et ^{224}Ra .

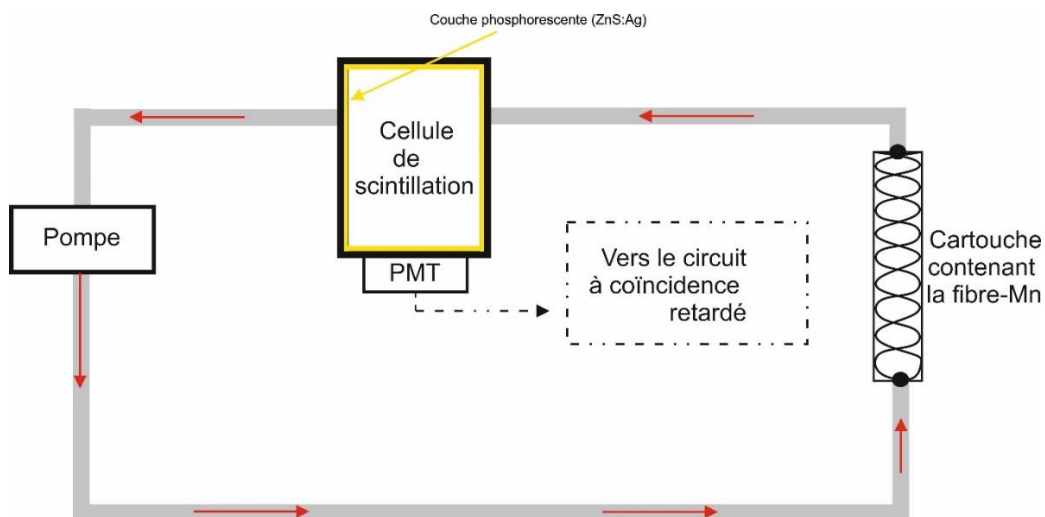


Fig. 48. Schéma du RaDeCC, simplifié à un seul détecteur (ID1 ou ID2).

Pendant la filtration à travers les fibres-Mn, il est possible que des quantités de ^{228}Th soient piégées dans la fibre, ce qui peut entraîner un excès de ^{224}Ra . Dans ce cas, une autre mesure doit être effectuée après deux à trois semaines du prélèvement initial afin de quantifier l'activité de ^{224}Rn apportée par ^{228}Th et de corriger les données en conséquence (Swarzenski et al., 2007). Il est également possible de mesurer ^{228}Ra à partir de ^{224}Ra généré six mois après le prélèvement, car ^{224}Ra est un descendant de ^{228}Ra (Moore, 2008). Le système d'analyse utilisé (RaDeCC) par le laboratoire d'hydrogéologie d'Avignon est présenté dans la figure 49.

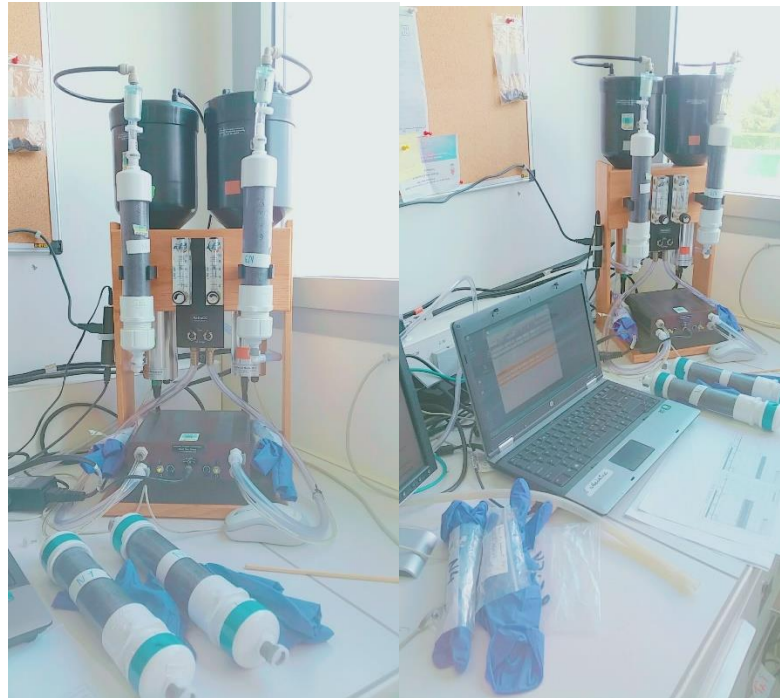


Fig. 49. Système d'analyse de la radioactivité dans les fibres Mn RaDeCC au laboratoire d'Hydrogéologie d'Avignon (Photo prise par Zemour Y.)

III. Comptage par RaDeCC

III.1. Mesure du bruit de fond (background)

Le système RaDeCC a l'avantage de mesurer des faibles cpm de bruit de fond, et ils peuvent augmenter en raison des produits de désintégration restant dans la cellule de comptage. Afin de nettoyer le système de ces isotopes résiduels, on fait circuler l'air dans le système ouvert pour quelques minutes. Cette procédure est efficace pour éliminer les contaminations possibles du système, en particulier l'accumulation des isotopes à longue vie. La mesure du bruit de fond est effectuée avant chaque comptage d'échantillon et utilisée pour la correction des résultats et les incertitudes.

Pendant que l'on ne détecte pas des cpm du bruit de fond de ^{219}Rn et ^{220}Rn , le compteur total peut enregistrer un nombre considérable du bruit de fond, ce qui crée des incertitudes lors du calcul des activités du ^{224}Ra par les comptes totaux. Parfois il vaut mieux attendre plusieurs heures (ou toute la journée et la nuit) pour que les éléments fils de Radium (Rn) qui restent dans le système de comptage se décomposent.

III.2. Enregistrement du signal et discrimination

Les comptages ^{224}Ra des échantillons sont effectués pendant 3 jours au maximum, juste après la journée de prélèvement (campagnes de Mai 2018, et Janvier 2019) afin d'éviter d'importantes désintégrations de ^{224}Ra . À chaque touche est émise une particule alpha dans la surface de la cellule de scintillation ZnS:Ag , un photon est produit, ce dernier est envoyé sur un photomultiplicateur puis le signal est transformé en impulsion électrique. Cette impulsion est conduite vers 3 canaux électriques différents : le canal 220, le canal total et le canal 219 (Fig. 50 : schéma de fonctionnement des différents circuits)

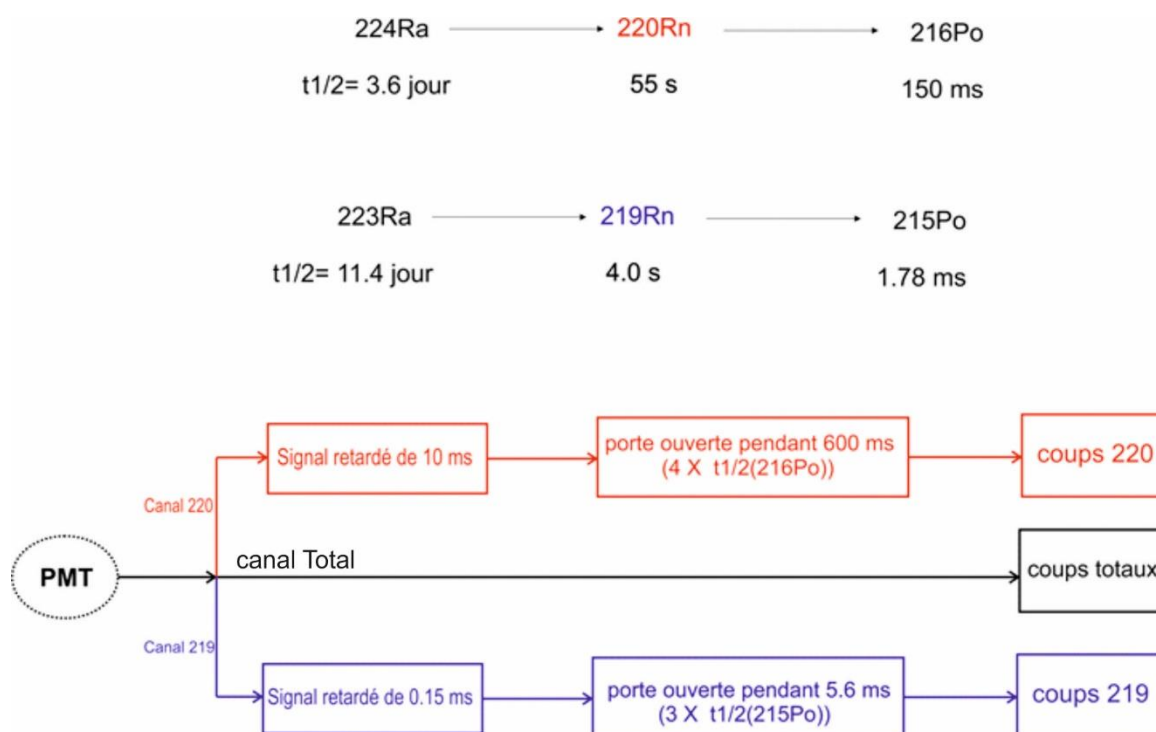


Fig. 50. Désintégration de ^{224}Ra et ^{223}Ra et schéma de fonctionnement (temps de retard et durée d'ouverture des portails) des différents canaux (220, 219 et total) du RaDeCC.

Le canal total enregistre un "coup" à toute impulsion "coups totaux". Cette valeur de cpm total est obtenue en divisant les "coups" totaux par le temps de comptage. Le canal 219 permet de déterminer les "coups" associés au ^{219}Rn (coups 219) et le canal 220 ceux dus au ^{220}Rn (coups 220). Après traitement, ces "coups" permettent d'obtenir respectivement les activités du ^{223}Ra et du ^{224}Ra .

Dans le circuit du canal 219, l'impulsion électrique est retardée de 0.15ms pour permettre au circuit de se stabiliser ou de filtrer tout événement indésirable. Cette impulsion enclenche l'ouverture d'une porte qui reste ouverte pendant 5.6 ms qui est le temps équivalent à trois périodes radioactives du ^{215}Po . Chaque deuxième impulsion détectée pendant cette période est enregistrée dans le canal 219 comme un coup 219.

En général, cette deuxième impulsion est issue de la désintégration du ^{215}Po , dont la demi-vie est de 1,78 milliseconde. Cependant, pour qu'elle soit enregistrée, il faut que le portail ait été ouvert au cours des 5,6 millisecondes précédentes par une particule alpha émise par le ^{219}Rn , dont la demi-vie est de 3,96 secondes et qui est le père du ^{215}Po . En somme, l'enregistrement de la deuxième impulsion dépend donc de la présence et du timing de la particule alpha émise par le ^{219}Rn . La division des coups 219 par le temps de comptage donne la valeur en coup par minute, étiquetée cpm219. Dans le canal 220, cette même impulsion électrique est retardée de 10 ms, de sorte que le ^{215}Po généré par le ^{219}Rn a le temps de se désintégrer. Par conséquent, aucun coup n'est enregistré car le ^{219}Rn est atténué sur le canal 220. Cette impulsion enclenche l'ouverture d'un portail pendant 600 ms (le temps équivalent aux quatre périodes radioactives du ^{216}Po). L'impulsion de chaque seconde détectée durant ce temps est enregistrée sur le canal 220 comme un coup 220. Cette seconde impulsion provient principalement de la décomposition du ^{216}Po dont la demi-vie est de 0,145 s. En divisant le nombre de coups de 220 sur une période de temps définie (temps de comptage), puis en exprimant ce résultat en coups par minute (cpm220), il est possible d'obtenir une mesure de l'activité radioactive. Une fois que les comptes de 219 et 220 ont été calculés, il est possible de déterminer l'activité du ^{223}Ra et ^{224}Ra présents sur la fibre de Mn.

III.3. Analyse des échantillons

L'analyse des échantillons a été réalisée par comptage des fibres de manganèse, à travers lesquelles les volumes d'eau prélevés (20 L pour chaque source d'eau) ont été filtrés. Les fibres de Mn sont des fibres acryliques sèches imprégnées de manganèse (15 à 25 g), qui peuvent piéger jusqu'à 97% du Radium présent dans 1 mètre cube d'eau (Moore, 2008).

Il convient de noter qu'avant d'utiliser les fibres pour le filtrage, une opération d'effilochage est nécessaire pour augmenter leur surface et leur volume afin de faciliter le passage de l'eau à travers et obtenir ainsi une meilleure capacité de rétention du Ra. Chaque échantillon a été filtré par gravité à travers une cartouche en PVC remplie de 20 g de fibres de Mn. Le débit de l'échantillon a été vérifié pour être inférieur à 1 L par minute, afin de garantir que la capacité de rétention des fibres de Mn soit supérieure à 97% (Moore, 2008).

Après la filtration des échantillons et avant de procéder au comptage des fibres Mn, une autre opération d'effilochage est nécessaire au laboratoire pour faciliter le passage du Rn vers la chambre de comptage lors de la mesure (voir Figure 51). Les fibres de manganèse doivent être

insérées dans la cartouche filtrante en PVC, où les fibres vierges sont utilisées pour la filtration pour la première fois.



Fig. 51. Opération d'effilochage de la Fibre-Mn au laboratoire LHA
(Photo prise par Zemour Y.)

III.4. Protocole de comptage

Les fibres ont été analysées avec le RaDeCC selon un protocole de comptage approprié pour assurer une mesure précise et obtenir les meilleurs résultats possibles. Le temps de comptage dépend du nombre de coups par minute (cpm) détecté, qui correspond aux activités présentes sur la fibre. Pour les échantillons à forte charge, 2 à 4 heures de comptage sont suffisantes, mais pour les échantillons à faible charge, le temps de comptage peut aller jusqu'à 12 heures (Garcia-Solsona, 2009).

Avant de commencer le comptage de l'échantillon, il est nécessaire de purger le système pendant 20 à 30 minutes en utilisant le mode « He purge » et une cartouche PVC vide afin d'éliminer le Radon restant dans la chambre de détection. Cela permet de réduire le bruit de fond et d'améliorer l'efficacité de l'analyse. Les échantillons doivent être analysés juste après le prélèvement, de préférence dans les 2 jours suivant le prélèvement. Plus le temps d'échantillonnage est court, moins l'incertitude de mesure est élevée en raison de la rapide décroissance du Radium 224. Cependant, il ne faut pas effectuer l'analyse du ^{224}Ra plus de 6 jours après le prélèvement en raison de sa demi-vie de 3,66 jours.

III.5. Calcul et traitement des données d'analyses

Le RadeCC est un système retardé (le retard se fait au niveau des portes qui restent ouvertes dans les deux canaux 220 et 219, il est de 600 ms et 5.6 ms respectivement) et certaines impulsions sont détectées et enregistrées dans le canal alors qu'elles ne le devraient pas. On peut les classer en deux catégories : les impulsions nommées "chance coincidence events" qui sont causées par des impuretés dans le ZnS:Ag et les impulsions enregistrées dans le mauvais canal.

Avant de calculer les valeurs des canaux 219 et 220, il est nécessaire de soustraire les "chance coincidence events" afin d'obtenir des résultats plus précis. Selon plusieurs études ([Moore and Arnold, 1996](#) ; [Moore, 2008](#) ; [Garcia-Solsona et al., 2008](#)), le nombre de "chance coincidence events" dans le canal 220 (220CC) peut être calculé en utilisant la formule (11) proposée par [Giffin et al., en 1963](#) :

$$220CC = \frac{[(cpmtotal - cpm\ 220 - cpm219)^2 * top]}{[1 - (cpmtotal - cpm\ 220 - cpm219) * top]} \quad (11)$$

où :

- cpm total, cpm 220 et cpm 219 = les coups par minute dans les canaux totaux, 220 et 219.
- t_{op} en minutes est la durée pendant laquelle les portes sont ouvertes, c'est à dire 0.01 min pour le canal 220.

Les données sont corrigées comme suit (12) :

$$corr220 = cpm220 - 220CC \quad (12)$$

Selon Garcia-Solsona et al., ([2008](#)), il est plus adapté d'utiliser la valeur de corr220 plutôt que celle de cpm220 pour le calcul des "chance coincidence events" dans le canal 219 (219CC). Ainsi, l'équation (13) de calcul de "chance coincidence events" dans le canal 219 est la suivante :

$$219CC = \frac{[(cpmtotal - corr220 - cpm219)^2 * 0,000093]}{[1 - (cpmtotal - corr220 - cpm219) * 0,000093]} \quad (13)$$

avec :

- cpm total et cpm 219 les coups par minute dans les canaux totaux et 219
- corr220, les coups par minute corrigés des "chance coincidence events"
- 0.000093 min est la durée d'ouverture de la porte dans le canal 219 ($9.35 \cdot 10^{-5}$ min).

Ensuite, les données sont corrigées comme suit (14) :

$$\text{Corr219} = \text{cpm219} - 219\text{CC} \quad (14)$$

Une deuxième correction est nécessaire pour éliminer tous les événements de désintégration du couple Rn-Po qui ont été enregistrés dans le mauvais canal. Pendant les 5,6 ms où le portail du canal 219 est ouvert, 2,55 % des désintégrations du ^{216}Po se produisent et sont enregistrées. Par conséquent, cpm est surestimé et nécessite une nouvelle correction pour obtenir la valeur finale (final219, cpm).

$$\text{final219} = \text{corr219} - 0,0255 * \text{corr220} \quad (15)$$

Lorsque le portail du canal 220 reste ouvert pendant 600 ms, une décroissance associée au couple $^{219}\text{Rn}-^{215}\text{Po}$ peut se produire. Bien que l'enregistrement soit normalement effectué dans le canal 219, deux événements de désintégration sont également enregistrés dans le canal 220 : un pour la désintégration du ^{219}Rn et un pour la désintégration du ^{215}Po . Pour déterminer la valeur finale du canal 220 (en cpm), la formule (16) proposée par Moore and Arnold, en 1996 et Garcia-Solsona et al., en 2008, peut être utilisée :

$$\text{final220} = \text{corr220} - \frac{[(1.6 * \text{corr219})^2 * 0.01]}{[1 + ((1.6 * \text{corr219}) * 0.01)]} \quad (16)$$

La formule de correction finale220 pour le canal 220 est similaire à la formule utilisée pour corriger les "chance coincidence events", mais elle prend en compte le fait que le détecteur a une efficacité de 0,8 pour la désintégration du ^{219}Rn et du ^{215}Po . Comme deux événements de désintégration doivent être pris en compte, la valeur doit être multipliée par 2. Le temps pendant lequel le portail du canal 220 reste ouvert est de 0,01 minute.

Les activités en désintégration par minutes (dpm) sont obtenues en divisant les valeurs finales par les efficacités de mesures de chaque canal, (17) et (18) :

$$\text{dpm219} = \frac{\text{final219}}{\text{eff219}} \quad (17)$$

$$\text{dpm220} = \frac{\text{final220}}{\text{eff220}} \quad (18)$$

Les activités finales des échantillons (dpm/L) sont déterminées après correction de ces valeurs par la désintégration radioactive et le volume (prélèvement-comptage) (19) et (20) :

$${}^{223}\text{Ra} = \frac{dpm219}{\exp(-\lambda {}^{223}\text{Ra} * t) * V} \quad (19)$$

$${}^{224}\text{Ra} = \frac{dpm220}{\exp(-\lambda {}^{224}\text{Ra} * t) * V} \quad (20)$$

avec :

- $\lambda {}^{223}\text{Ra}$ et $\lambda {}^{224}\text{Ra}$ les constantes de désintégration du ${}^{223}\text{Ra}$ ($4.21 \cdot 10^{-5} \text{ min}^{-1}$) et du ${}^{224}\text{Ra}$ ($1.32 \cdot 10^{-4} \text{ min}^{-1}$),

- t représente la durée qui s'écoule entre la prise d'échantillon (prélèvement) et l'analyse

- V est le volume d'eau filtré (L).

Si le canal total dépasse 10cpm, les activités ${}^{224}\text{Ra}$ sont élevées et doivent être calculées différemment (Moore, 2008), selon l'équation (21) :

$${}^{224}\text{Ra}_{tot} = \frac{(\text{cpm total} - \text{total bkg cpm})}{\text{eff total} * \exp(-\lambda {}^{224}\text{Ra} * t) * V} - \frac{dpm 219}{\exp(-\lambda {}^{223}\text{Ra} * t) * V} \quad (21)$$

où total bkg cpm est le bruit de fond dans le canal total en cpm.

En ce qui concerne la suite de notre travail, les activités des radio-isotopes du Radium (${}^{223}\text{Ra}$, ${}^{224}\text{Ra}$, ${}^{226}\text{Ra}$ et ${}^{228}\text{Ra}$) seront reportées en unité Bq/m^3 au lieu de dpm/L pour se conformer au Système international de mesure de radioactivité.

IV. Méthode de mesure ${}^{222}\text{Rn}$ et ${}^{226}\text{Ra}$ par le RAD7

IV.1. Le système Rad7 (Rad-H₂O) et mesure du Radon

Le Rad7 est un instrument de DURRIDGE COMPANY (www.durridge.com) qui est souvent utilisé pour déterminer les activités du Thoron (${}^{220}\text{Rn}$) et du Radon (${}^{222}\text{Rn}$). Il permet également de mesurer les activités de ${}^{226}\text{Ra}$ et ${}^{224}\text{Ra}$ en équilibre avec le ${}^{222}\text{Rn}$ et le Thoron ${}^{220}\text{Rn}$ en utilisant les cartouches qui contiennent les fibres manganèses (MnO_2). Le DURRIDGE RAD7 utilise un détecteur alpha à l'état solide. Un détecteur à semi-conducteur dans la cellule interne du RAD7 est un matériau semi-conducteur (généralement du silicium) qui convertit le rayonnement alpha directement en un signal électrique.

Pour simplifier l'explication du principe de cet instrument, les isotopes du thoron (${}^{220}\text{Rn}$) du Radon (${}^{222}\text{Rn}$) pénètrent dans la cellule par un circuit d'air, où ils se désintègrent pour donner des

isotopes du polonium (^{216}Po et ^{218}Po) sous forme d'ions d'une charge positive. Ces deux isotopes sont repoussés par un champ électrique vers le détecteur alpha à l'intérieur de la cellule. Chaque particule alpha a une énergie spécifique à l'isotope dont elle est issue, et lorsque la particule est produite par la décomposition de l'isotope du polonium, elle apparaît sur la surface du détecteur en générant une impulsion de charge proportionnelle à son énergie. Après que l'impulsion soit générée par la particule alpha sur la surface du détecteur, elle est convertie en un signal électrique. Ce signal est ensuite amplifié, traité et conditionné par le circuit et le microprocesseur RAD7 avant d'être stocké en mémoire interne.

Nous avons utilisé le système RAD7 Rad-H₂O pour mesurer la teneur en Radon dans l'eau "BIG BOTTLE RAD-H₂O". Les échantillons ont été prélevés selon la technique proposée par le fabricant, qui consiste à conditionner l'échantillon d'eau thermique dans une bouteille de 2 L, fermée hermétiquement et sans aucune bulle d'air. Le système Rad-H₂O correspond à un circuit fermé reliant le RAD7 et la bouteille d'échantillon d'eau. L'air pompé par le RAD7 passe à travers un bulleur qui crée de petites bulles d'air à l'intérieur de la bouteille. Le Radon présent dans l'eau s'équilibre avec cet air et est renvoyé au RAD7. Pour réduire l'humidité entrante dans le circuit et éviter que la colonne de drierite ne sature rapidement, une grande colonne de drierite a été placée dans le circuit en amont du RAD7 (Fig. 52). Le Rad7 détermine la concentration du Radon à partir de ses descendants ^{218}Po . Le ^{222}Rn de l'échantillon d'eau circule en continu à travers la colonne du déshydratant, le RAD7, puis retourne dans l'échantillon d'eau afin d'atteindre un équilibre entre l'eau et l'air. Ensuite, l'activité du ^{222}Rn est déterminée en comptant ses descendants émetteurs alpha dans le moniteur.

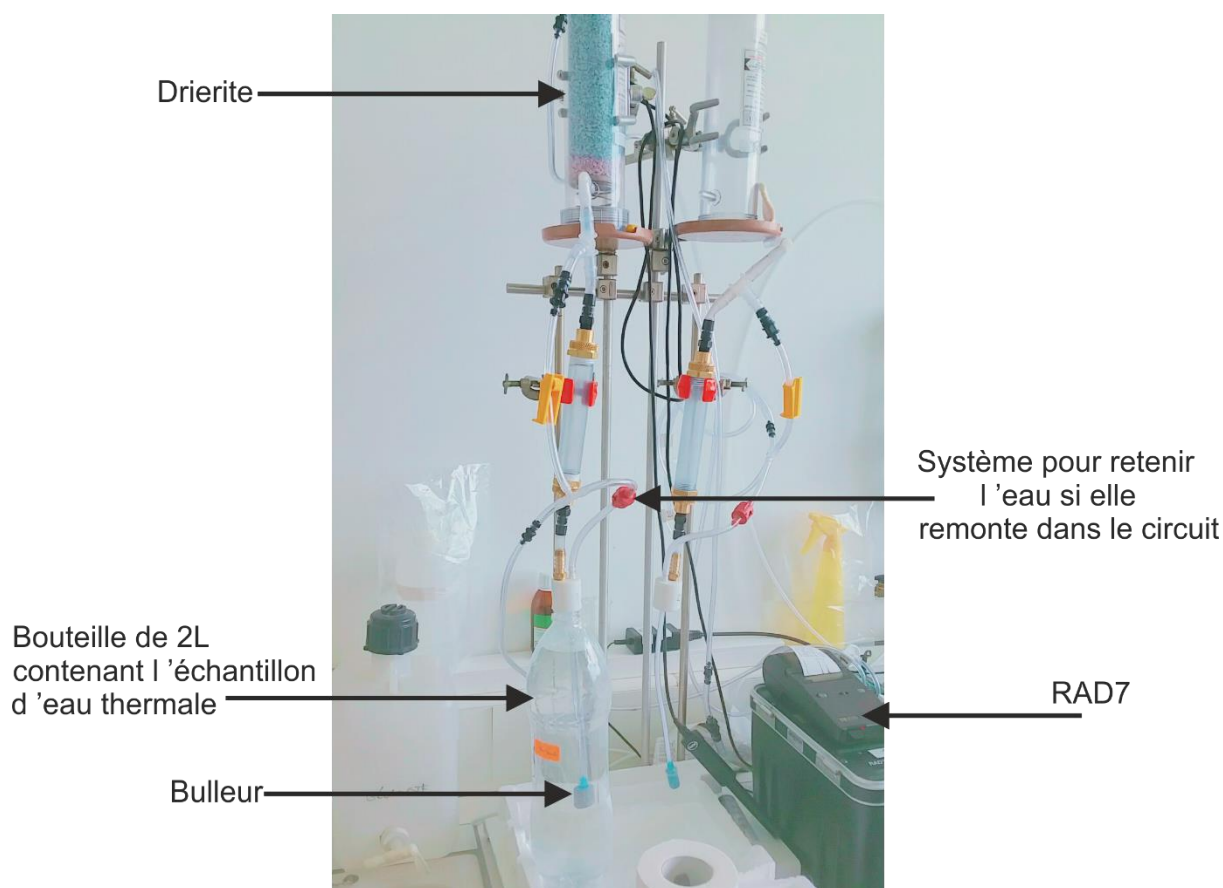


Fig. 52. Système pour déterminer les activités ^{222}Rn dans des échantillons d'eau thermique prélevés dans des bouteilles 2L avec un RAD7 au laboratoire LHA d'Avignon
(Photo prise par Zemour Y.)

La mesure de l'activité du Radon dans l'eau peut être affectée par divers facteurs, dont le plus critique est la technique d'échantillonnage. D'autres facteurs à considérer sont la concentration de l'échantillon, sa température, sa taille, le temps de comptage, l'humidité relative et le bruit de fond (Todorovic et al., 2011).

IV.1.1. Protocole de mesure

Avant d'effectuer une mesure, le RAD7 doit être exempt de Radon et sec. Pour y parvenir, il doit être purgé pendant un certain temps. Au cours d'un test, une bouteille d'échantillon a été connectée au RAD7 et la pompe à air interne intégrée du moniteur du Radon a été utilisée pour faire circuler l'air en boucle fermée à travers l'échantillon d'eau, éliminant le Radon dissous de l'eau dans la boucle d'air fermée.

Le Rad-H₂O nécessite que le déshydratant soit utilisé tout le temps pour sécher le flux d'air avant qu'il n'entre dans l'instrument. Un flacon de mesure contenant un échantillon d'eau est mis en place dans une boucle d'air fermée avec le RAD7. La méthode RAD-H₂O utilise un schéma

d'aération en boucle fermée dans lequel le volume d'air et le volume d'eau sont constants et indépendants du débit. L'air circule encore et encore dans l'eau et extrait continuellement le Radon jusqu'à ce qu'un état d'équilibre se développe. Ce système atteint l'état d'équilibre en 5 minutes environ, après quoi le Radon ne peut plus être extrait de l'eau. La pompe RAD7 fonctionne automatiquement pendant 5 min pour aérer l'échantillon, répartissant le Radon qui était dans l'eau tout au long de la boucle. Durant les 5 min d'aération, plus de 95% du Radon disponible est éliminé de l'eau. Après les 5 minutes d'aération, le RAD7 attend encore 5 minutes pour que le taux de comptage du ^{218}Po s'approche de l'état d'équilibre, avant de commencer à compter pendant quatre cycles de 5 minutes chacun. Cela permet d'obtenir une mesure précise de l'activité du Radon dans l'échantillon d'eau.

Afin d'éviter des erreurs de mesure, il est important de prendre en compte la sensibilité du système de détection RAD7 à l'humidité. Ainsi, avant de procéder à toute analyse, il est nécessaire de s'assurer que l'humidité se situe autour de 7%. De plus, il est indispensable de sécher l'air avant de le faire pénétrer dans la cellule du détecteur. Il faut prévoir approximativement 10 min de purge avec un sécheur adéquat. Il est important que l'humidité relative soit inférieure à 7 % dans l'instrument, ce qui garantit qu'elle restera inférieure à 10 % pendant tout le processus de mesure.

Au cours d'une analyse de 30 minutes d'échantillons d'eau en protocole wat250 et en mode sniff, la concentration moyenne en Radon a été déterminée à partir de l'activité du ^{218}Po . À la fin de la course (30 min après le début), le RAD7 a imprimé un résumé montrant la concentration moyenne de Radon en quatre cycles durant 5 min chacun. Le comptage est arrêté manuellement après environ 2 heures, c'est-à-dire après 8 runs. La pompe est allumée «On» pendant la première heure pour avoir un bon portage du Radon de l'eau vers le moniteur. Ensuite, la pompe peut être passée manuellement en mode "automatique" (dans ce cas, elle sera activée uniquement si l'humidité du RAD7 dépasse 10%). La température de l'eau est nécessaire pour les calculs, elle est mesurée en continu durant le comptage à l'aide d'une sonde fixée à l'extérieur de la bouteille. Finalement, le traitement des données de RAD7 a été fait par le logiciel CAPTURE l'option « BIG BOTTLE RAD-H2O ». Si l'humidité dans le compteur est très élevée, le système perd sa sensibilité de mesure, et donc l'activité enregistrée est sous-estimée et doit alors être corrigée. Les activités ^{222}Rn sont déterminées par la moyenne des activités estimées du RAD7. Certains paramètres sont rentrés manuellement afin que le traitement des données soit correct, tels que la température et certains volumes du système.

IV.2. Analyse et mesure du Radium longue demie-vie (^{226}Ra)

Les activités du Radium de longue demie-vie ont été mesurées à l'aide du RAD-7. La méthode d'utilisation du RAD7 pour mesurer le ^{226}Ra sur les fibres manganèse a été introduite pour la première fois par Kim et al., (2001). La méthode repose sur le principe de l'équilibre radioactif entre les isotopes du Ra et leurs descendants à vie courte. Les descendants du Radium (^{222}Rn , ^{220}Rn et ^{219}Rn) circulent dans une boucle d'air connectée à :

1. une colonne déshydratante pour éliminer toute humidité qui immobilise les espèces Po chargées,
2. un filtre à air pour empêcher les particules et les produits de filiation du Radon attachés,
3. un moniteur de Radon dans l'air où les isotopes descendants du Rn (^{218}Po , ^{216}Po et ^{215}Po) sont précipités électrostatiquement sur un détecteur à semi-conducteur, qui produit des spectres alpha, permettant ainsi la séparation isotopique par discrimination énergétique.

Le principe de cette méthode implique un circuit fermé qui comprend une cartouche contenant de la fibre MnO_2 et une pompe qui permet la circulation de l'air. Cette circulation d'air transporte le Radon, qui est en équilibre avec le Radium adsorbé sur la fibre manganèse (MnO_2), vers la cellule interne du RAD7, où le système de détection contenant un détecteur alpha repousse les isotopes ^{218}Po et ^{216}Po générés par la pénétration et la décroissance de ^{222}Rn et ^{220}Rn . La figure 53 illustre le fonctionnement du système de mesure de la circulation du Radon et des isotopes du Polonium. Ce système permet d'extraire de manière quantitative les isotopes du Radium présents dans les eaux naturelles en utilisant des fibres de MnO_2 disposées en colonne. Ensuite, la colonne de fibres de Mn est connectée à une colonne de déshydratant via un drierite, et à un moniteur de Radon dans l'air (RAD-7).

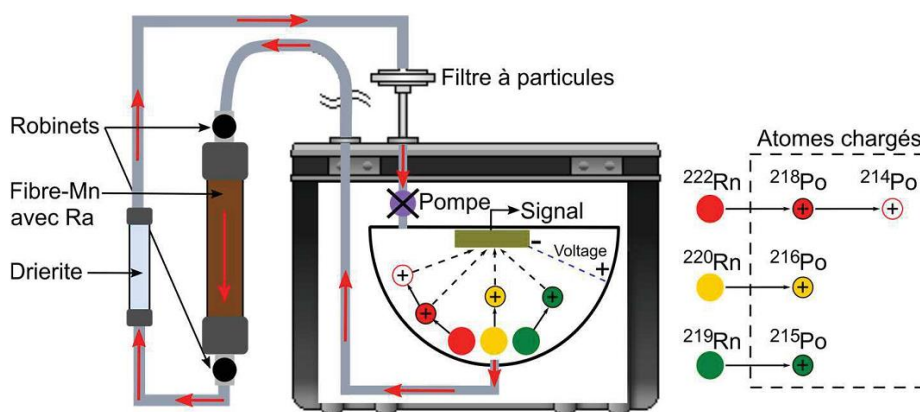


Fig. 53. Schéma du circuit fermé pour la détection de ^{226}Ra à partir de ^{222}Rn en utilisant le détecteur RAD7 (Molina Porras, 2017)

IV.2.1. Protocole de mesure

Pour mesurer le ^{226}Ra à l'aide de ce système, nous avons placé la fibre de Mn dans une colonne qui a ensuite été fermée pour permettre la croissance du ^{222}Rn pendant plusieurs jours. Avant que la colonne ne soit fermée, tout Rn dans la fibre de Mn est expulsé pour réinitialiser le temps de croissance interne. Nous connectons la cartouche de fibres de Mn dans une boucle d'air fermée avec le RAD7 et un tube de drierite. À l'aide de deux vannes à deux voies, nous pouvons également isoler une boucle de dérivation qui peut plonger la cartouche. Puisque le principe est de distribuer le ^{222}Rn qui s'est accumulé à l'intérieur de la cartouche tout au long de la boucle d'air, il est nécessaire de maintenir le volume de cette boucle constant pour chaque mesure successive afin d'assurer l'exactitude de l'étalonnage (Lee et Kim, 2006).

Nous avons maintenu une pression légèrement négative à l'intérieur d'une colonne en plastique ou en verre épais (en pompant de l'air) pour minimiser toute fuite de Rn de la colonne pendant la période d'équilibrage interne. Pour les mesures de ^{226}Ra à partir du ^{222}Rn , la vitesse de circulation de l'air n'est pas un facteur important étant donné la longue période de demi-vie du ^{222}Rn . Pour permettre l'équilibrage du ^{222}Rn et du ^{218}Po , le système est autorisé à fonctionner pendant 15 min avant que les données ne soient collectées. En général, des temps de comptage d'environ 1 à 2 h sont utilisés pour chaque échantillon, mais cela dépend fortement des activités de ^{226}Ra et du volume d'échantillon passé à travers la fibre. Le spectre alpha permet de distinguer clairement le ^{218}Po (6,00 MeV) des autres produits de filiation du Radon. Si une interférence avec le ^{212}Bi (6,08 MeV) se produit, le RAD-7 effectue une correction en comptant simultanément le ^{212}Po (8,78 MeV), le descendant direct du Bismut-212 (^{212}Bi).

V. Conclusion

Ce chapitre a abordé les processus et les facteurs associés à la décroissance radioactive, la dissolution, la migration et le transport des radio-isotopes naturels dans les eaux souterraines, avec un accent particulier sur le Radium (^{223}Ra , ^{224}Ra , ^{226}Ra et ^{228}Ra) et le Radon (^{222}Rn). L'origine et l'évolution géochimique de ces isotopes ont été présentées, ainsi que leur comportement chimique dans l'eau. La compréhension de leur comportement dans l'eau peut aider à mieux comprendre leur utilisation comme traceurs dans différents processus géologiques et hydrogéochimiques affectant les eaux souterraines. Les isotopes du Radium à longue demi-vie (^{226}Ra et ^{228}Ra) sont plus utilisés que le Radium à courte demi-vie (^{223}Ra et ^{224}Ra) ; ces derniers n'ont presque jamais été étudiés dans les eaux thermales. Par contre, le Radon à courte demi-vie (^{222}Rn) a fait l'objet d'un certain nombre d'études dans les eaux thermales, mais généralement

ces dernières sont plus concentrées sur l'évaluation de sa concentration d'inhalation. Les méthodes et protocoles de mesure de ces isotopes ont également été présentées, telles que RaDeCC et Rad7. Ces différents instruments (RaDeCC et Rad7) sont connus par leur sensibilité à la détection de l'activité du Radium et du Radon dans l'échantillon.

Ce chapitre constitue une introduction à l'étude qui suivra et qui étudiera en détail le comportement hydrogéochimique de ces radio-isotopes (Radium et Radon) dans les eaux thermales du Nord-Ouest algérien.

Chapitre V

*Le Radon et les isotopes du Radium dans les eaux thermales,
Contrôle hydrochimique, résultats et interprétations*

I. Introduction

Ce chapitre présente les résultats clés de l'étude sur le comportement hydrogéochimique des radionucléides du Radium et du Radon dans les eaux des systèmes hydrothermaux de l'Ouest algérien.

Les principaux résultats ont fait l'objet d'un article intitulé «*Hydrochemical and geological controls on dissolved Radium and Radon in northwestern Algeria hydrothermal groundwaters*», publié dans la revue *Chemosphere* (Zemour et al., 2023) et met en évidence les différents processus qui contrôlent l'immigration/mobilité du Radium et du Radon, tels que les processus primaires, secondaires (chimiques), hydrogéologiques et tectoniques (*article ci-joint en annexe, consultable sur : <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2022.137573>*).

Cette partie de l'étude est axée sur une analyse approfondie du Radium et du Radon et propose une première description des concentrations d'activité de ces radionucléides dans les systèmes hydrothermaux du nord-ouest de l'Algérie, ainsi que leurs activités respectives (^{223}Ra , ^{224}Ra , ^{226}Ra , et ^{228}Ra et ^{222}Rn). Les résultats de cette étude sont considérés comme une empreinte du système hydrothermal actuel, et peuvent être utilisés comme référence pour des études ultérieures visant à évaluer les changements dans les concentrations d'activité de ces radionucléides dus à la gestion de cette importante ressource en eau.

Les radionucléides du Radon et du Radium sont présents dans les eaux souterraines, notamment dans les systèmes hydrothermaux des régions géologiquement complexes. Dans ce contexte, l'Ouest algérien présente un intérêt particulier en raison de la présence d'importants aquifères, essentiellement localisés dans des formations carbonatées.

La variabilité des activités du Radon et du Radium dans les eaux souterraines a fait l'objet de plusieurs études visant à expliquer leur origine (e.g., Dulaiova et al., 2008). Cependant, en raison des comportements complexes de Ra et Rn dans les aquifères souterrains, aucune base fixe et générale ne peut être tirée de ces études. En outre, il a été récemment démontré que le Radon et le Radium sont présents dans les milieux aquatiques souterrains non seulement en raison de la désintégration et de recul alpha, mais également en raison de processus tels que la désorption des surfaces d'oxydes, de Fer et de Manganèse, dans la matrice aquifère, la dissolution des minéraux porteurs de Ra dans les matériaux aquifères et l'échange d'ions (Sturchio et al., 2001; Vengosh 2009; Sherif et al., 2018; Sherif and Sturchio, 2021).

L'investigation de la radioactivité naturelle des isotopes Ra et Rn dans les systèmes hydrothermaux a été un sujet d'intérêt pour de nombreux chercheurs à travers le monde (Turekian

et al., 1986 ; Clark et al., 1990 ; Sturchio et al., 1993 ; Durecová et al. , 2006 ; Bituh et al., 2009 ; Condomines et al., 2012 ; Roba et al., 2012 ; Wang et al., 2017 ; Adeliikhah et al., 2020 ; Nguyen et Nowak, 2021). D'autres recherches ont porté sur la géochimie des radionucléides dans les systèmes aquifères côtiers (Gattacceca et al, 2011 ; Vinson et al., 2013 ; Lamontagne et al., 2015 ; Rodellas et al., 2017 ; Santoni et al., 2020) et les aquifères continentaux (Guerrero et al., 2016 ; Rajaomahefasoa et al., 2019 ; Nagabhushana et al., 2020 ; Sherif et al., 2018 ; Sherif & Sturchio, 2021). Selon la littérature, les isotopes du Radium à longue durée de vie, ^{226}Ra (série ^{238}U , $t_{1/2}=1600$ ans) et ^{228}Ra (série ^{232}Th , $t_{1/2}=5,75$ ans) peuvent donner des informations utiles sur l'origine de l'eau, les proportions de mélange des masses d'eau et les interactions roches/sédiments. Ces processus ont été étudiés dans les eaux thermales (e.g. Sturchio et al., 1993), ainsi que dans les eaux douces souterraines avec des activités ^{226}Ra ou/et des rapports isotopiques ($^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$) contrastés (e.g. Vinson et al., 2012). D'autre part, les isotopes du Ra à courte durée de vie, ^{224}Ra (série Th, $t_{1/2}=3,6$ j) et ^{223}Ra (série ^{235}U , $t_{1/2}=11,43$ j), ainsi que le Radon ^{222}Rn (série ^{238}U , $t_{1/2}= 3.82$ j), sont principalement utilisés pour étudier des processus dynamiques tels que la résidence de l'eau ou les temps de transfert, bien qu'ils soient également utiles pour examiner les interactions entre les roches et l'eau. De plus, le Radon présente des propriétés de solubilité et de mobilité dans l'eau, ainsi que des niveaux d'activité variable entre les eaux de surface et les eaux souterraines, qui en font un traceur adéquat pour les études de trajectoire des eaux souterraines et d'interaction entre les eaux souterraines et de surface (Khadka et al., 2017).

L'Algérie est un pays doté d'importantes ressources en eaux thermales, faisant l'objet de nombreuses études hydrochimiques. Cependant, l'occurrence naturelle des radioéléments issus des chaînes de désintégration de l'Uranium et du Thorium, notamment les isotopes à courte et longue durée de vie du Radium ainsi que du gaz Radon, dans les eaux souterraines du pays n'a pas encore été abordée. Quelques recherches précédentes ont principalement porté que sur la distribution de certains isotopes radioactifs (^{238}U , ^{235}U , ^{232}Th et ^{40}K) et leurs impacts sur la santé (Amarouche-Yala et al., 2015 ; Kebir et Boucenna, 2017). D'autres recherches ont été menées dans le sud algérien, plus précisément dans le Continental Intercalaire, en utilisant certains radioéléments tels que le chlore 36 pour dater les eaux souterraines (Petersen et al., 2018). Néanmoins, la distribution et le comportement des isotopes radiologiquement significatifs tels que le Radium et le Radon dans les systèmes hydrothermaux algériens n'ont pas été bien étudiés jusqu'à présent.

Notre travail vient pallier cette lacune. En effet, l'objectif de notre étude est de mieux comprendre le comportement des isotopes du 223 , 224 , $^{226,228}\text{Ra}$ et du ^{222}Rn par l'étude des mécanismes géologiques et hydrogéochimiques qui contrôlent la distribution de ces radionucléides dans les

systèmes hydrothermaux. Nous évaluons également les impacts potentiels sur la santé de la consommation des eaux de ces sources thermales en raison de leur forte radioactivité, en plus de contribuer à une meilleure connaissance et donc une meilleure gestion de cette ressource renouvelable.

Ce chapitre comprend trois parties : la première partie (i) présente les principaux résultats de la radioactivité mesurée dans les eaux thermales, en termes de variations et de distribution ; la deuxième partie (ii) traite du déséquilibre radioactif et des rapports radio-isotopiques ; et enfin, la troisième partie (iii) examine les processus hydrogéochimiques qui influencent les activités des radionucléides.

II. Les principaux résultats de la radioactivité des eaux thermales

Les données du Radium et du Radon sont présentés en Bq/m³ dans le tableau 9 ci-dessous. Les rapports d'activités sont également consignés dans ce même tableau (Tableau. 9).

II.1. Radioactivité des isotopes à courte demi-vie

II.1.1. ²²³Ra

Le radionucléide ²²³Ra, descendant du ²²⁷Th de la chaîne de désintégration de l'Uranium 235, a une période radioactive courte de 11 jours et représente les activités les plus faibles parmi les radionucléides étudiés dans les sources thermales. En moyenne, toutes les sources présentent une activité de 17,34 Bq/m³. Les eaux bicarbonatées de la région de Tlemcen, telles que Chiguer, Boughrara, Tahamamit, Ain Hammam et Sidi Abdely, présentent des activités très faibles allant de 0 à 0,75 Bq/m³. Les sources de Mascara et d'Ain Temouchent, comme Bouhnifia, El Hammat, Hammam Bouhdjar et Sidi Ayd, ont des activités modérées allant jusqu'à 81,23 Bq/m³, mesurée à la source thermale d'El Hammat. La distribution spatiale de ces activités au niveau de la région étudiée est présentée sur la carte de la figure 54.

Tableau 9. Radioactivité en Radium et Radon des eaux thermales de l'Ouest algérien

S	NS	^{222}Rn (Bq / m ³)	^{223}Ra (Bq / m ³)	^{224}Ra (Bq / m ³)	^{226}Ra (Bq / m ³)	^{228}Ra (Bq / m ³)	$^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$	$^{223}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$	$^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$	$^{224}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$
S1	Mkeberta	nd	0,02 ± 0,3	27,62 ± 5,43	11,8 ± 2,1	1,0 ± 0,1	nd	0,001	0,07	28,0
S2	Beni Yessad	1301 ± 161,89	6,93 ± 2,26	303,54 ± 14	109,74 ± 4,8	258,6 ± 11	11,85	0,063	2,35	1,17
S3	Mentila	nd	16,38 ± 3,27	367,74 ± 7,45	167,93 ± 15,71	378 ± 34	nd	0,09	2,25	0,97
S4	Hamam Rabi	3432,92 ± 250	1,0 ± 0,1	13,81 ± 2,83	87,82 ± 6	16,44 ± 3,32	39	0,01	0,18	0,83
S5	Sid Aissa	1710 ± 106,89	21,81 ± 4,67	190 ± 13	469 ± 13	83,56 ± 7,25	3,64	0,04	0,17	2,27
S6	Chiguer	24402 ± 677,84	0,14 ± 0,15	19,57 ± 1,25	43,26 ± 3,25	4 ± 2	564	0,003	0,09	4,83
S7	Bouhrara	675,31 ± 96,11	1,0 ± 0,1	5,8 ± 1,0	164,47 ± 5,19	20 ± 3,64	4,1	0,004	0,12	0,28
S8	Tahamamit	6438,24 ± 277,72	0,37 ± 0,08	12,57	22 ± 4,13	4,4 ± 3,39	289,9	0,016	0,19	2,85
S9	Ain Hammam	5609 ± 251,52	0,15 ± 0,06	2	7,15 ± 1	1,42 ± 1	784,47	0,021	0,19	1,42
S10	Sidi Abdely	9978,14 ± 346,63	0 ± 0,1	9,78 ± 1,0	18,57 ± 2	8,25 ± 2,83	537,19	0	0,44	1,18
S11	Bouhnifia-Nekhla	377155,77 ± 2958	0,41 ± 0,2	57,95 ± 2,94	684,52 ± 10,24	17,89 ± 3,54	550,97	0	0,02	3,23
S12	Bouhnifia El-Hamia	103965,61 ± 1365,97	59,96 ± 11,59	533,94 ± 26,2	4367,74 ± 50	388,44 ± 17	23,8	0,01	0,08	1,37
S13	El-Hamat	10862 ± 405	81,23 ± 15,75	646,39 ± 31,94	3090,87 ± 32,38	532,15 ± 17	3,51	0,02	0,17	1,21
S14	Ain Franin	1609,57 ± 147,76	4,68 ± 1	99,65 ± 5	34,79 ± 4,74	86 ± 8	46,25	0,13	2,47	1,15
S15	Hamam Bouhdjar	4474,86 ± 137	16,73 ± 3,9	395,86 ± 19,88	1136,8 ± 2	475,67 ± 13,72	3,93	0,014	0,41	0,83
S16	Sidi Ayd	2293 ± 3,64	67 ± 14,64	730,57 ± 37,97	1217,68 ± 21	704 ± 17,65	2,45	0,05	0,57	1,03

S : échantillon, NS : nom de la source, nd : non déterminé

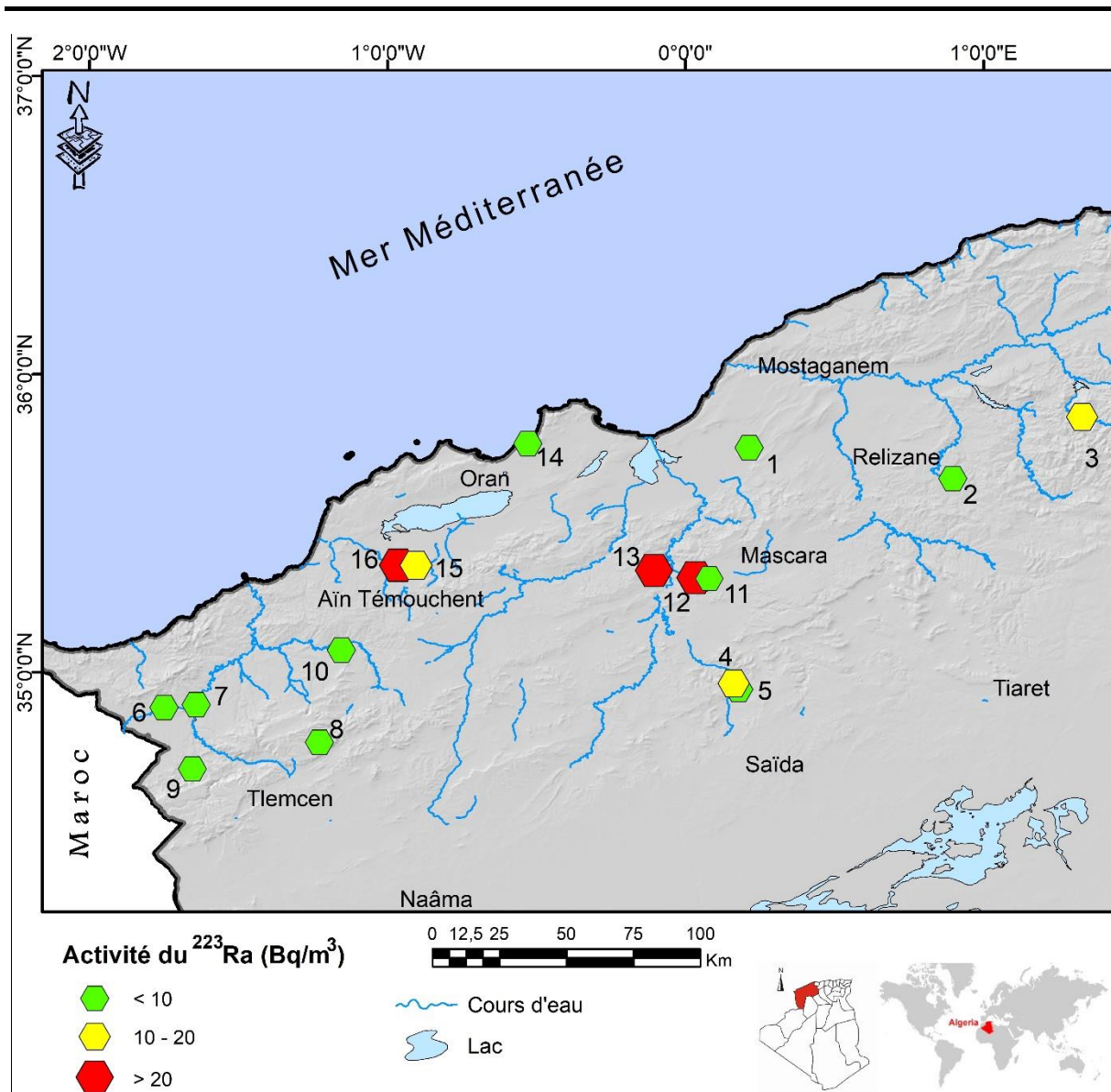


Fig. 54. Distribution et variation des activités de ^{223}Ra

(1: Mkeberta; 2: Beni Yesaad; 3: Mentila; 4: Hammam Rabi; 5: Sidi Aïssa; 6: Chiguer; 7: Boughrara; 8: Tahamamit; 9: Ain Hemmam; 10: Sidi Abdelly; 11: Bouhnifia Nekhla; 12: Bouhnifia N°3 Hamia; 13: El Hammat; 14: Ain Franin; 15: Hammam Bouhdjar; 16: Sidi Aïd)

II.1.2. ^{224}Ra

Le descendant de ^{228}Ra , le ^{224}Ra (chaîne ^{238}U) a la période radioactive la plus courte (3.6 jours) de tous les radio-isotopes analysés dans cette étude. Il montre des résultats extrêmement variables allant de 2.04 jusqu'à 730.57 Bq/m³ mesurée à la source d'Ain Hammam (Tlemcen) et Sidi Aïd (Ain Temouchent), respectivement. La concentration moyenne est 213,56 Bq/m³. Les sources de la région de Tlemcen montrent des activités faibles tandis que les sources d'Ain Temouchent et Mascara présentent des concentrations très élevées. La figure 55 montre la distribution des activités ^{224}Ra des sources thermales étudiées.

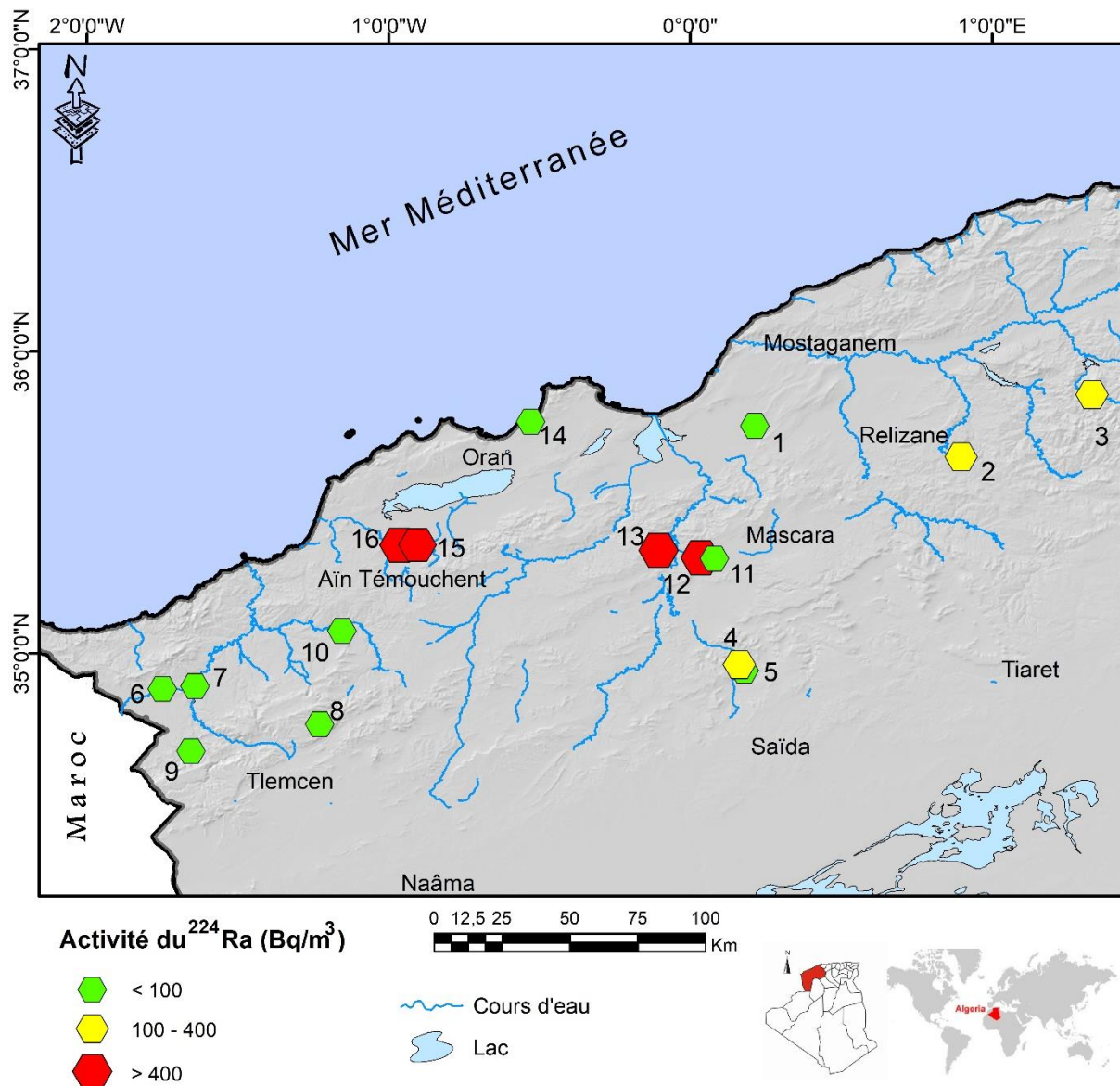


Fig. 55. Distribution et variation des activités de ^{224}Ra

(1: Mkeberta; 2: Beni Yesaad; 3: Mentila; 4: Hammam Rabi; 5: Sidi Aissa; 6: Chiguer; 7: Boughrara; 8: Tahamamit; 9: Ain Hemmam; 10: Sidi Abdelly; 11: Bouhnifia Nekhla; 12: Bouhnifia N°3 Hamia; 13: El Hammat; 14: Ain Franin; 15: Hammam Bouhdjar; 16: Sidi Ayd)

II.1.3. ^{222}Rn

Dans les études radio-isotopiques du Radium dans les eaux, il est très important de connaître les activités du gaz Radon (^{222}Rn) car ce dernier est le produit de désintégration direct du ^{226}Ra (élément fils du ^{226}Ra). Contrairement au Radium, les résultats montrent des concentrations très élevées en ^{222}Rn . La concentration moyenne est 39615 Bq/m³. Les échantillons montrent une large gamme d'activités ^{222}Rn et Ra. L'activité du ^{222}Rn varie de 675 Bq/m³ à 377155 Bq/m³. L'activité Rn la plus élevée est mesurée à la source Bouhnifia Nekhla (S11).

Sur la carte (Fig. 56), ce sont les sources de la région de Mascara (Bouhnifia et Hammia) qui se distinguent par les concentrations en ^{222}Rn les plus élevées. Ces fortes concentrations seraient probablement dues au manque de contact majeur avec le Radon émanant de la matière minérale uranifère et la forte profondeur du réservoir géothermal, qui ne permet pas la remontée du gaz Radon et sa diffusion dans l'atmosphère.

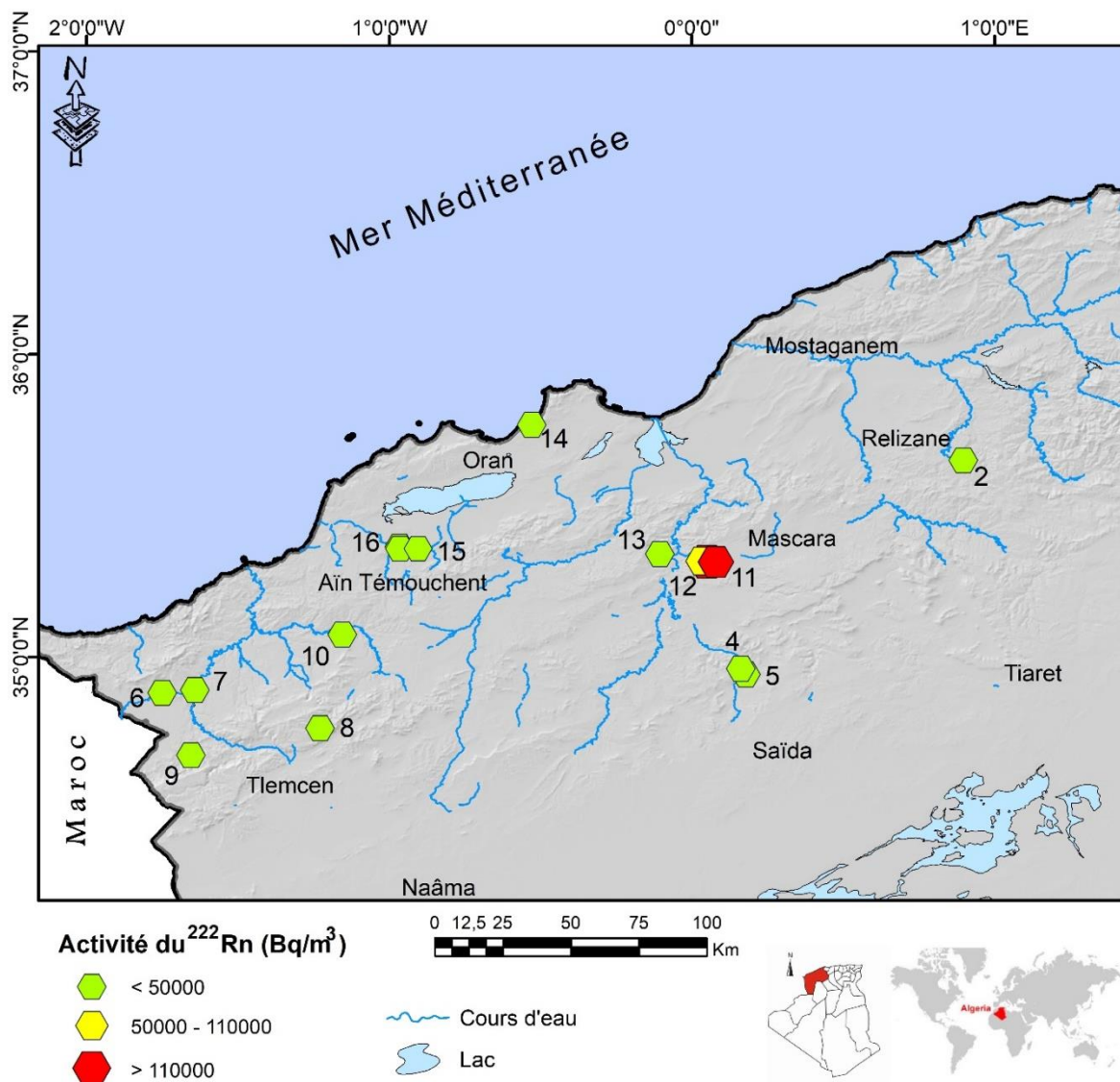


Fig. 56. Distribution et variation des activités de ^{222}Rn

(2: Beni Yessaad; 4: Hammam Rabi; 5: Sidi Aïssa; 6: Chiguer; 7: Boughrara; 8: Tahamamit; 9: Ain Hemmam; 10: Sidi Abdelly; 11: Bouhnifia Nekhla; 12: Bouhnifia N°3 Hamia; 13: El Hammat; 14: Ain Franin; 15: Hammam Bouhdjar; 16: Sidi Aïd)

II.2. Radioactivité des isotopes à longue demi-vie

II.2.1. ^{226}Ra

Le ^{226}Ra avec sa longue période de demi-vie (1600 ans), est le plus important à évaluer dans les eaux pour les études hydrogéochimiques. Le ^{226}Ra est également le radionucléide qui a un haut

niveau de toxicité du point de vue radiologique. Par conséquent, une étude de la distribution de l'activité du ^{226}Ra dans l'eau naturelle est importante pour évaluer l'exposition aux rayonnements de la population. La variabilité des concentrations en ^{226}Ra est présentée dans la Figure 57. Comme élément père du Radon, le Radium ne montre pas des résultats assez semblables à celle de son élément fils. Cependant, ces deux éléments montrent des activités très fortes pour les sources de Mascara et Ain Temouchent. Les activités du ^{226}Ra varient de 7,2 à 4368 Bq/m³, mesurées à Ain hammam et Bouhnifia el Hammia, respectivement.

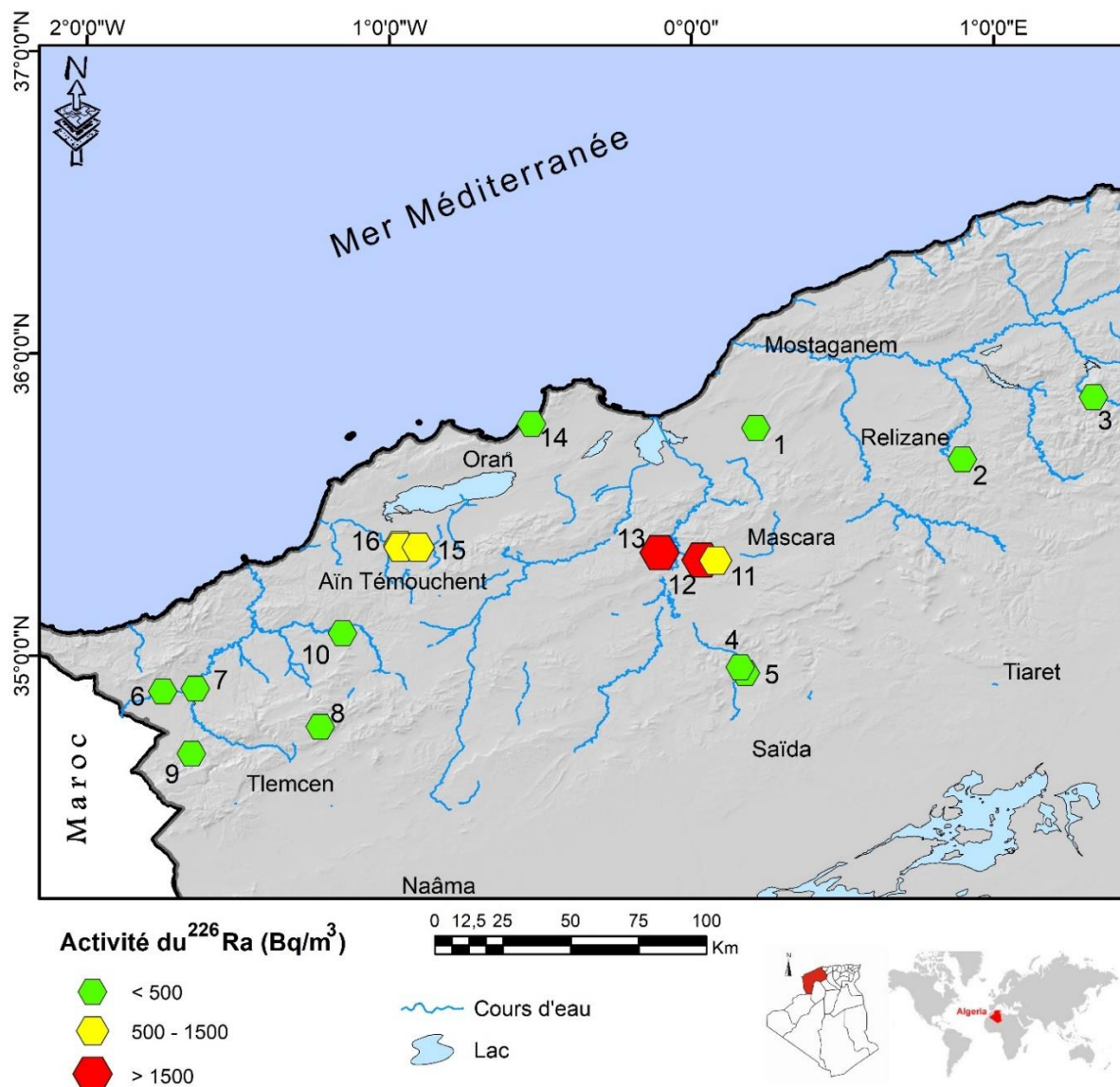


Fig. 57. Distribution et variation des activités de ^{226}Ra

(1: Mkeberta; 2: Beni Yesaad; 3: Mentila; 4: Hammam Rabi; 5: Sidi Aïssa; 6: Chiguer; 7: Boughrara; 8: Tahamamit; 9: Ain Hammam; 10: Sidi Abdelly; 11: Bouhnifia Nekhla; 12: Bouhnifia N°3 Hamia; 13: El Hammat; 14: Ain Franin; 15: Hammam Bouhdjar; 16: Sidi Aïd)

II.2.2. ^{228}Ra

Les concentrations de l'isotope ^{228}Ra sont quasiment équivalentes à celles de son élément de désintégration, le ^{224}Ra . Les sources de Bouhnifia (El Hammia), El Hammat, Hammam Bouhdjar

et Sidi Ayd présentent des niveaux de concentration élevés, avec des valeurs respectives de 388, 532, 476 et 704 Bq/m³. En revanche, la source de Mekeberta présente la concentration la plus faible, avec une valeur de 0,9 Bq/m³. La carte de la figure 58 représente la distribution des résultats à travers la zone étudiée (Fig. 58).

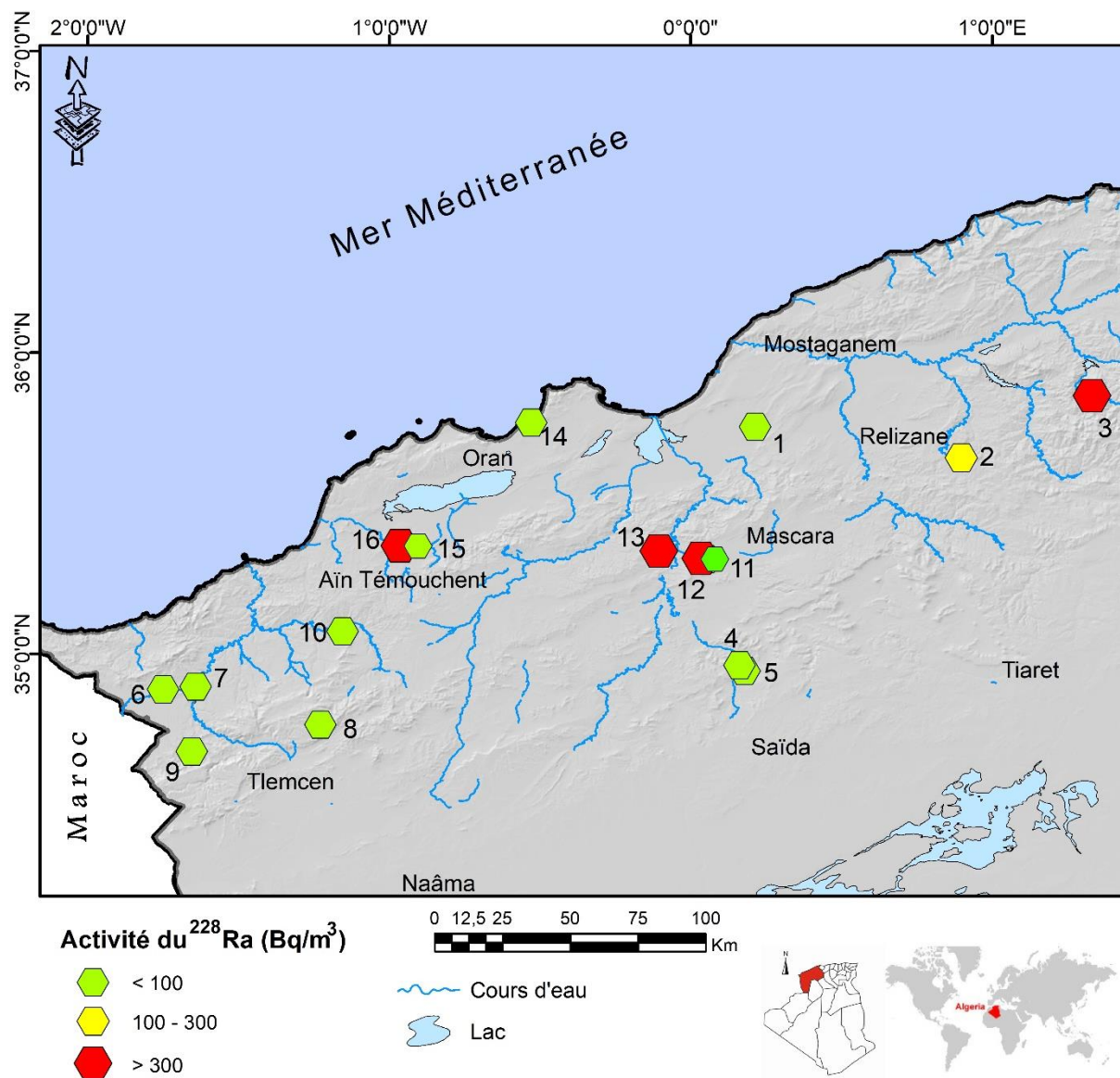


Fig. 58. Distribution et variation des activités de ²²⁸Ra

(1: Mkeberta; 2: Beni Yesaad; 3: Mentila; 4: Hammam Rabi; 5: Sidi Aissa; 6: Chiguer; 7: Bouhrara; 8: Tahamamit; 9: Ain Hemmam; 10: Sidi Abdelly; 11: Bouhnifia Nekhla; 12: Bouhnifia N°3 Hamia; 13: El Hammat; 14: Ain Franin; 15: Hammam Bouhdjar; 16: Sidi Ayd)

Finalement, les activités du Radium et du Radon ne sont pas uniformément distribuées, c'est-à-dire qu'il existe une différence significative entre les concentrations des points d'eaux examinées. Ces résultats permettent de confirmer que les eaux thermales du NW algérien peuvent contenir une radioactivité très élevée et leurs teneurs en ²²²Rn et en isotopes du Ra sont globalement élevées dans les eaux. Ce sont principalement les sources thermales de la région de Mascara

(Bouhnifia-Nekhla, Bouhnifia El-Hamia et El Hammat) et celles de la région d'Ain Temouchent (Hammam Bouhdjar et Sidi Ayd) qui présentent les niveaux d'activités les plus élevés ; la source de la radioactivité doit donc être proche de ces aquifères géothermaux. Par contre, les sources de la région de Tlemcen ont des activités relativement faibles. Ces faibles concentrations de la radioactivité de Radium, sont probablement dues au manque de contact majeur avec la matière minérale uranifère ou à l'éloignement de la source principale de la radioactivité.

III. Comparaison de la radioactivité des eaux thermales algériennes avec d'autres eaux thermales dans le monde

Les résultats exposés ci-dessus s'avèrent très importants et certaines sources présentent des teneurs très élevées. En effet, les activités de Radium et de Radon mesurées dans cette étude dépassent celles rapportées dans plusieurs pays d'Afrique du Nord, ainsi que dans plusieurs pays du monde. Nous avons comparé, dans cette étude, les niveaux de radioactivité des eaux thermales algériennes à celles d'autres pays, notamment l'Iraq ([Ahmad et al., 2021](#)), la Pologne ([Nguyen et Nowak, 2021](#)), l'Indonésie ([Nugraha et al., 2021](#)), l'Espagne ([Ródenas et al., 2008](#); [Moreno et al., 2018](#)), la Chine ([Wang et al., 2017](#)), la Turquie ([Yarar et al., 2015](#); [Akkaya et al., 2016](#)), la Tunisie ([Belgacem et al., 2015](#)), l'Iran ([Dabbagh et al., 2006](#); [Mirhosseini et al., 2015](#)), l'Italie ([Pugliese et al., 2013](#)), la Roumanie ([Roba et al., 2012](#)), l'Inde ([Chaudhuri et al., 2010](#)), la Russie ([Onishchenko et al., 2010](#)), l'Egypte ([Sherif et Sturchio, 2021](#)), le Vietnam ([Duong et al., 2018](#)), la France ([Condomines et al., 2010](#)), la Syrie ([Takriti et Jubeli, 2003](#)), et la Croatie ([Marović et al., 1996](#)). Des cartes de variation d'activité du Radium ([Fig. 59](#)) et du Radon ([Fig. 60](#)) à travers le monde ont été tracées. Elles mettent en évidence les niveaux élevés d'activité des eaux thermales algériennes.

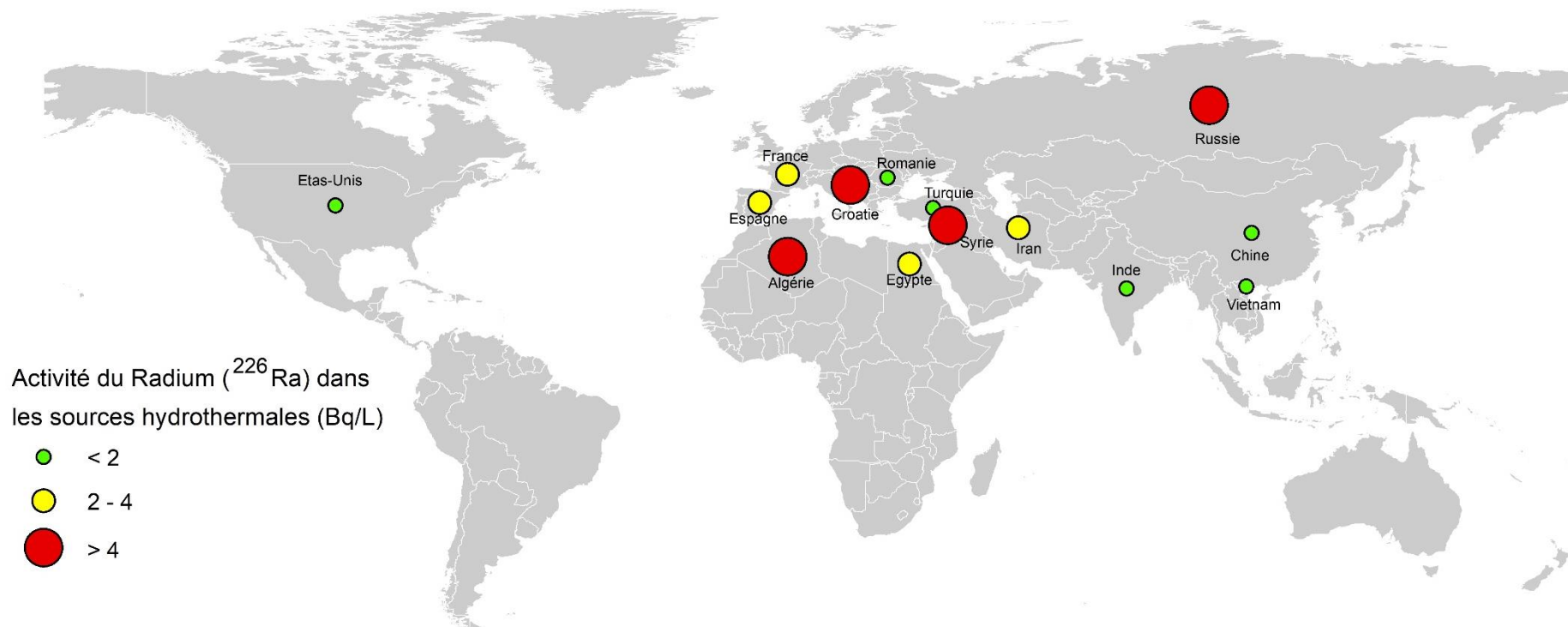


Fig. 59. Teneurs en ^{226}Ra des eaux thermales dans le monde

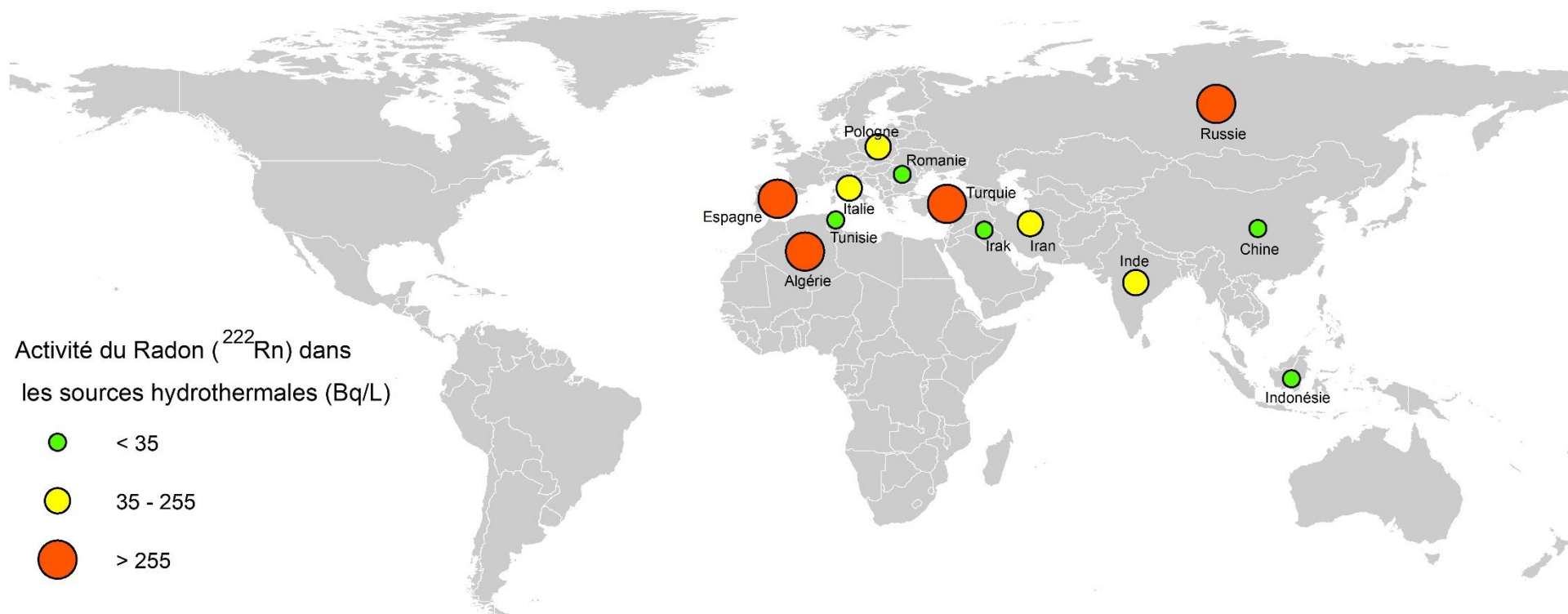


Fig. 60. Teneurs en ^{222}Rn des eaux thermales dans le monde

IV. Les déséquilibres radioactifs par les rapports d'activité isotopique (contrôle géologique)

Dans les couches géologiques, les nucléides fils présentent des activités égales à celles de leur parent, dans un état appelé équilibre séculaire ou équilibre radioactif, où le rapport isotope parent-fils est de 1. Cependant, lorsque la roche est en contact avec les eaux souterraines, les radio-isotopes se redistribuent entre la roche et la solution en raison d'une variété d'interactions eau-roche, y compris la dissolution, la précipitation, sorption-désorption, écoulement des eaux souterraines et processus physiques tels que le recul alpha. Ces interactions font passer le système eau-roche des conditions d'équilibre radioactif à un état appelé état de déséquilibre radioactif. Par exemple, dans les roches, on considère généralement que ^{234}U et ^{238}U sont à l'équilibre séculaire. Par contre, dans les eaux, les déséquilibres peuvent être importants (Kronfeld et al 1975).

Les relations de déséquilibre entre les isotopes des séries de l'Uranium et du Thorium peuvent être utilisées pour estimer les paramètres géologiques du système ainsi que de déterminer la mobilité relative et les échelles de temps de perturbation des radionucléides dans le système géothermique (Schwarcz et al., 1982). Le déséquilibre radioactif est déterminé par l'étude des rapports d'activité isotopique tels que $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$, $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ etc. Les données de déséquilibre de la série de l'Uranium provenant des eaux souterraines peuvent fournir des informations sur l'histoire récente de la migration des radionucléides et les conditions géochimiques associées à l'interaction eau-roche (Abdul-Hadi et al., 2001 ; Thompson et al., 2003). En effet, les mesures des rapports des isotopes du Radium ont permis de mieux comprendre les mécanismes contrôlant l'échange de radio-isotopes et d'estimer les taux d'interaction chimique fluide-roche (Hammond et al., 1988). Les rapports d'activité $^{224}\text{Ra}/^{223}\text{Ra}$ et $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ semblent être des indicateurs appropriés de la composition de la roche hôte, et donc de l'origine des fluides géothermiques. Par conséquent, cela permet de fournir des informations sur le contrôle géologique des radionucléides dans les eaux souterraines.

IV.1. Contrôle géologique des radionucléides dans les systèmes hydrothermaux

Le Radium peut pénétrer dans les eaux souterraines par de multiples processus, tels que la désintégration de l'U et du Th dissous et le recul alpha des isotopes parents, la désorption des surfaces de l'aquifère, la dissolution des solides de l'aquifère et les réactions d'échange de cations (Krishnaswami et al., 1982 ; Ku et al., 1992 ; Porcelli et al., 2003). La lithologie de l'aquifère joue un rôle important dans la présence du Radium dans les eaux souterraines. Les eaux souterraines provenant des réservoirs gréseux (Elliot et al., 2014 ; Faraj et al., 2020 ; Gilkeson et Cowart, 1987 ; Grundl et Cape, 2006 ; Ivanovich et al., 1992 ; Jaeschke et al., 2020 ; Knee et Masker, 2019 ; Lauer et Vengosh, 2016 ; Lauer et al, 2016 ; Lauer et al., 2018 ; Mathews et al.,

2018 ; Sherif et al., 2018 ; Sherif et Sturchio, 2018 ; Stackelberg et al., 2018 ; Szabo et al., 2012 ; Vengosh et al., 2009 ; Vinson et al., 2012), et des carbonates (Brown et al., 2019 ; Condomines et al., 2014 ; Jones et al., 2011 ; Luis Guerrero et al., 2016 ; Minster et al., 2004 ; Sturchio et al., 2001) ont généralement des activités de Ra plus élevées que les eaux souterraines provenant d'aquifères de roches mafiques ou volcaniques, avec des concentrations de Ra plus faibles (Charette et al., 2015 ; Kadko et al., 2007 ; Szabo et al., 2012). Des niveaux élevés de Ra dans les eaux souterraines ont été documentés, en particulier dans les aquifères associés à des roches riches en Thorium telles que les sables de monazite (Lauria et al., 2004).

Le Radon est le produit direct de désintégration de ^{226}Ra et sa concentration dans les eaux souterraines est fonction de plusieurs processus, tels que l'apparition de Ra, le contact entre l'eau et le solide, le dégazage et la décomposition dans l'aquifère.

IV.1.1. Rapport d'activité Radium- Radon et relation entre les radio-isotopes

Les isotopes du Radium ne se fractionnent pas de manière significative pendant les interactions chimiques entre l'eau et la roche (c.-à-d., dissolution, adsorption-désorption), et par conséquent, les abondances et les rapports des quatre isotopes de Ra dans les eaux souterraines, dépendent principalement des abondances primordiales de ^{238}U , ^{232}Th et ^{235}U et de leurs rapports dans les matériaux qui constituent l'aquifère. La large gamme d'occurrences de radioactivité du Radium et du Radon pour toutes les sources étudiées, et la gamme observée de leurs rapports ($^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$, $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ et $^{224}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$) pourraient être attribuées à la complexité des caractéristiques géologiques et des conditions hydrogéologiques du nord-ouest de l'Algérie.

IV.1.1.1. Rapport d'activité $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$ et ^{222}Rn versus les isotopes du Radium

Le ^{222}Rn est le fils radiogénique immédiat du ^{226}Ra et sa concentration dans les eaux souterraines est fonction de plusieurs processus, tels que l'abondance du nucléide parent (c'est-à-dire le ^{226}Ra) dans les eaux et dans les solides de l'aquifère, la surface de contact entre l'eau et le solide, le dégazage et la décomposition dans l'aquifère.

Les teneurs en ^{222}Rn sont pour la plupart plus élevées que celles en Radium. Le rapport $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$ est largement supérieur à l'équilibre radioactif, il varie d'un minimum de 2,45 à Sidi Ayd (Ain Temouchent) à un maximum de 784,47 Bq/m³ à Ain Hammam (Tlemcen).

Le Radon et le Radium ont donc une tendance d'être en déséquilibre dans les eaux thermales. En comparant les teneurs en ^{226}Ra avec celles de son fils direct, ^{222}Rn , il ressort que les deux isotopes semblent avoir des comportements opposés liés aux processus qui se déroulent dans la zone d'ascension des eaux jusqu'à l'émergence de la source.

Une très faible corrélation a été observée entre ^{222}Rn et ^{226}Ra ($R=0.17$), cela montre que les activités du ^{222}Rn ne sont pas directement associées au ^{226}Ra (Fig. 61a). En plus, aucune

corrélation n'a été trouvée entre le Radon et les isotopes du Radium (Fig. 61b, c et d), ce qui indique que le Radon a un comportement complètement indépendant du Radium dans les eaux thermales algériennes. Géochimiquement, les concentrations du Radon montrent qu'elles ne sont pas nécessairement associées aux activités du Radium dans les eaux souterraines. L'incompatibilité observée du $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$ peut indiquer qu'un très faible pourcentage de ^{222}Rn dissous émane du ^{226}Ra dans les eaux thermales. Dans le cas des sources thermales du NW algérien, le Radon ne suit pas les activités de son radioélément parent ^{226}Ra , ce qui implique qu'il est plus dépendant des caractéristiques géologiques de la région. Le déséquilibre de $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$ et les activités élevées du ^{222}Rn par rapport au Radium a déjà été observé dans les eaux thermales (Ródenas et al., 2008 ; Yasar et al., 2015).

L'intensité du débit d'eau est un autre facteur important pour les concentrations en ^{222}Rn . Par conséquent, les niveaux de ^{222}Rn sont pour la plupart plus élevés que les niveaux de Radium, et le taux entre ces radionucléides peut atteindre trois fois celui du Radium (Bettencourt et al. 1988). Un cas presque pareil au nôtre où les teneurs de Radon plus élevées dans les sources chaudes iraniennes proviennent des dépôts de travertin (CaCO_3) (Bettencourt et al. 1988). Généralement, l'accumulation de travertin est associée à des failles, qui fournissent des conduits rapides pour la remontée du Radon vers la surface (Beitollahi et al. 2007). Cette raison peut expliquer les fortes teneurs en Rn dans les eaux thermales de Bouhnifia, Nekhla et Hammat ainsi que les sources d'Ain Temouchent par rapport au reste des sources. Les zones hydrothermales de Bouhnifia et Ain Temouchent sont connus par des vastes dépôts de travertin près des émergences. Ces manifestations physiques et géologiques permettent de mieux comprendre la radioactivité élevée en Rn, probablement favorisée par l'ascension rapide de ce gaz.

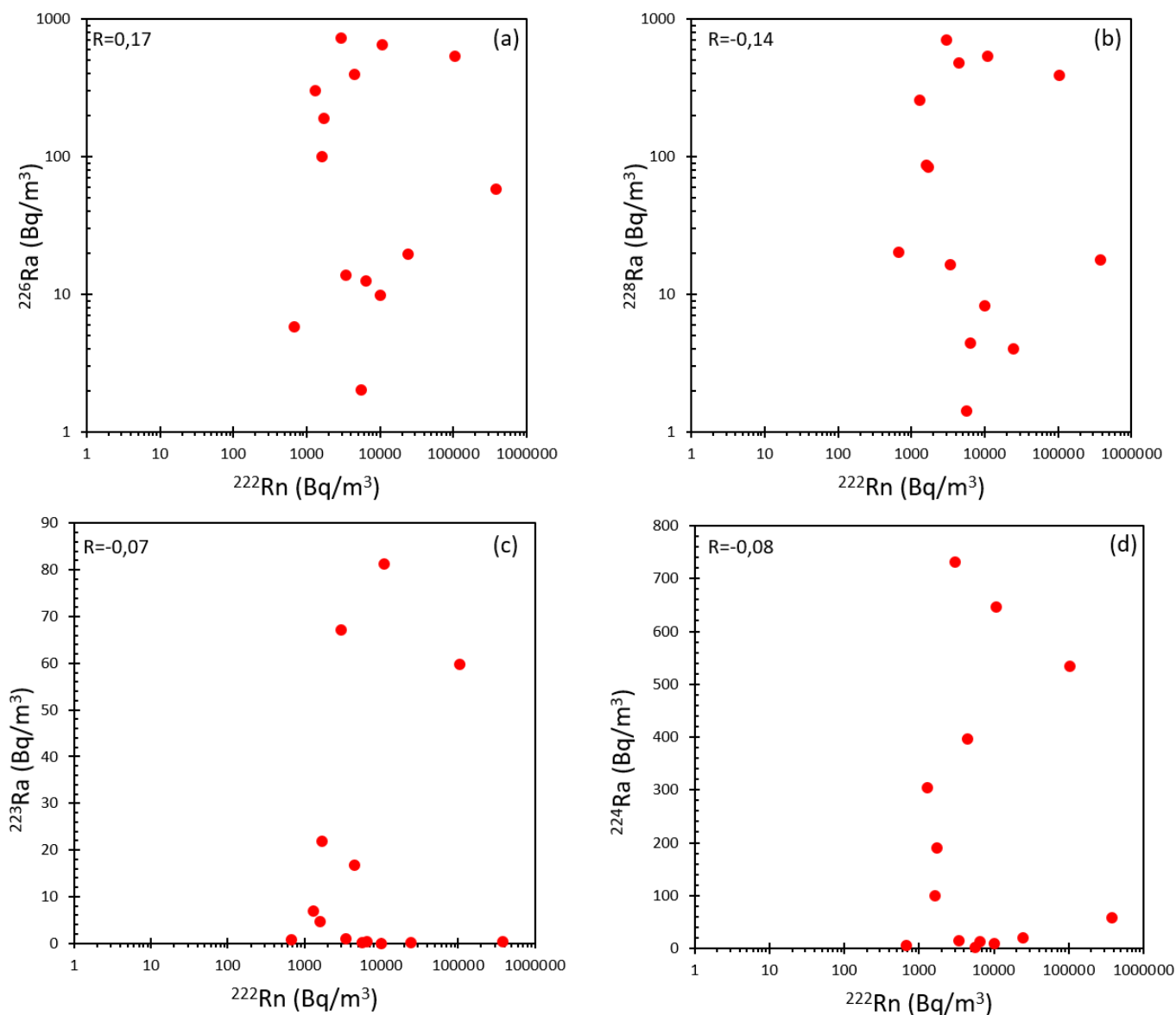


Fig. 61. ^{222}Rn vs ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{223}Ra et ^{224}Ra

Le déséquilibre observé entre le Radon et le Radium conduit à supposer que le Radon ne provient pas exclusivement de la désintégration du Radium dissous dans l'eau, mais plutôt que le Radon, parce que c'est un gaz rare, a un modèle de comportement qui est essentiellement déterminé par des processus physiques et non par les possibilités d'interactions chimiques qui caractérisent le Radium.

Selon Gainon (2008), le rapport de déséquilibre entre le ^{226}Ra et son fils direct ^{222}Rn peut fournir des informations sur le mélange d'eau profonde avant son arrivée à l'exutoire (Fig. 62a et b). Les eaux profondes (thermales) sont réduites et riches en ^{226}Ra . A leurs émergences à la surface, elles gardent leurs caractéristiques chimiques. Par contre, si ces eaux se mélangent avec des eaux peu profondes ou locales en amont de l'émergence, le Radium aurait une tendance à s'immobiliser par les processus chimiques (adsorption sur les hydroxydes de fer et de manganèse

ou co-précipitation). Une fois que le Radium ^{226}Ra s'immobilise dans cette zone de mélange, il produit du ^{222}Rn .

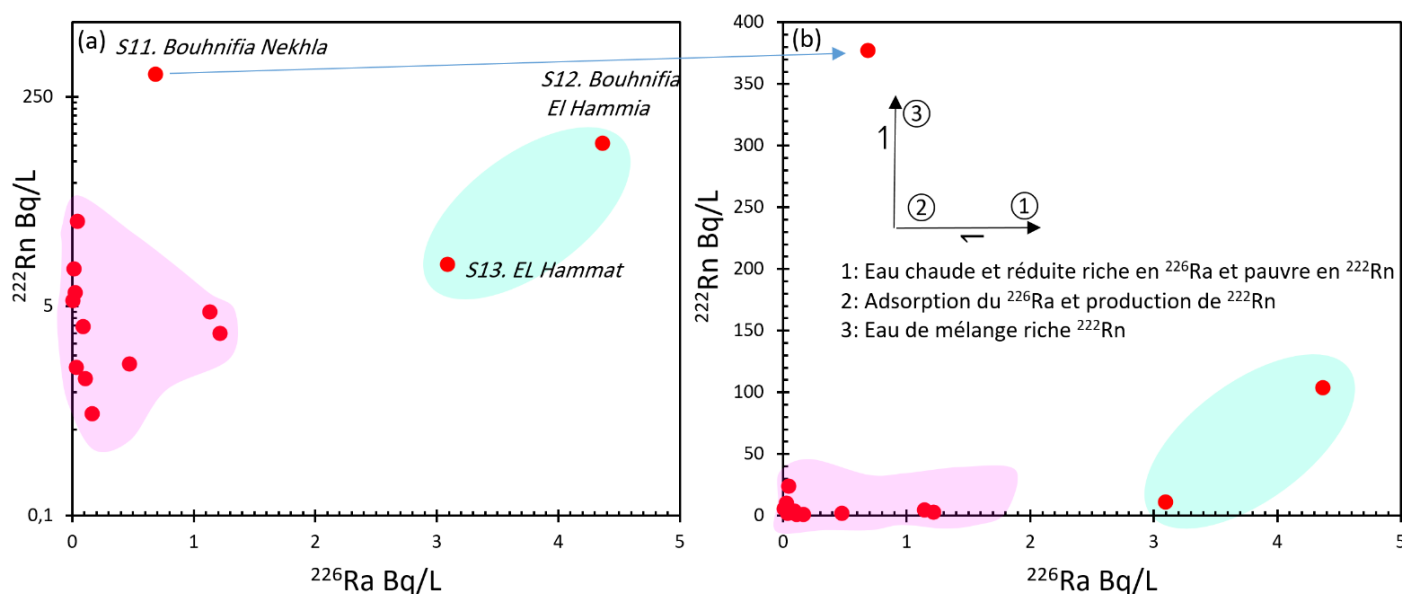


Fig. 62. Teneurs en ^{226}Ra vs ^{222}Rn

Leurs concentrations opposées permettent de formuler une hypothèse sur leur comportement dans la zone d'exutoire de l'eau profonde

Il serait intéressant d'examiner si le rapport $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$ est corrélé au taux de mélange et la température est utilisée ici pour représenter le taux de mélange (Gainon, 2008). Dans ce rapport, les activités du ^{222}Rn et ^{226}Ra sont exprimées en Bq/l.

Le rapport $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$ pour les eaux thermales de la région d'étude tend à baisser quand la température augmente (Fig. 63). Selon cette tendance, les échantillons illustrent bien le principe de l'augmentation du rapport avec un mélange entre des eaux thermales et des eaux froides. Les sources de Sidi Ayd, Bouhdjar, Bouhnifia el Hammia et el Hammat sont celles qui ont le rapport le plus bas (<40 Bq/l) avec des températures élevées et donc qui ne sont pas mélangées. Par contre, les sources thermales d'Ain Hemmam, Chiguer, Sidi abdely et Bouhnifia Nekhla montrent des rapports $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$ plus élevés (>300 Bq/l), ce qui indique une grande potentialité de mélange de ces eaux. À noter que certaines de ces sources émergent à la surface avec des débits importants, ce qui peut confirmer l'hypothèse du mélange.

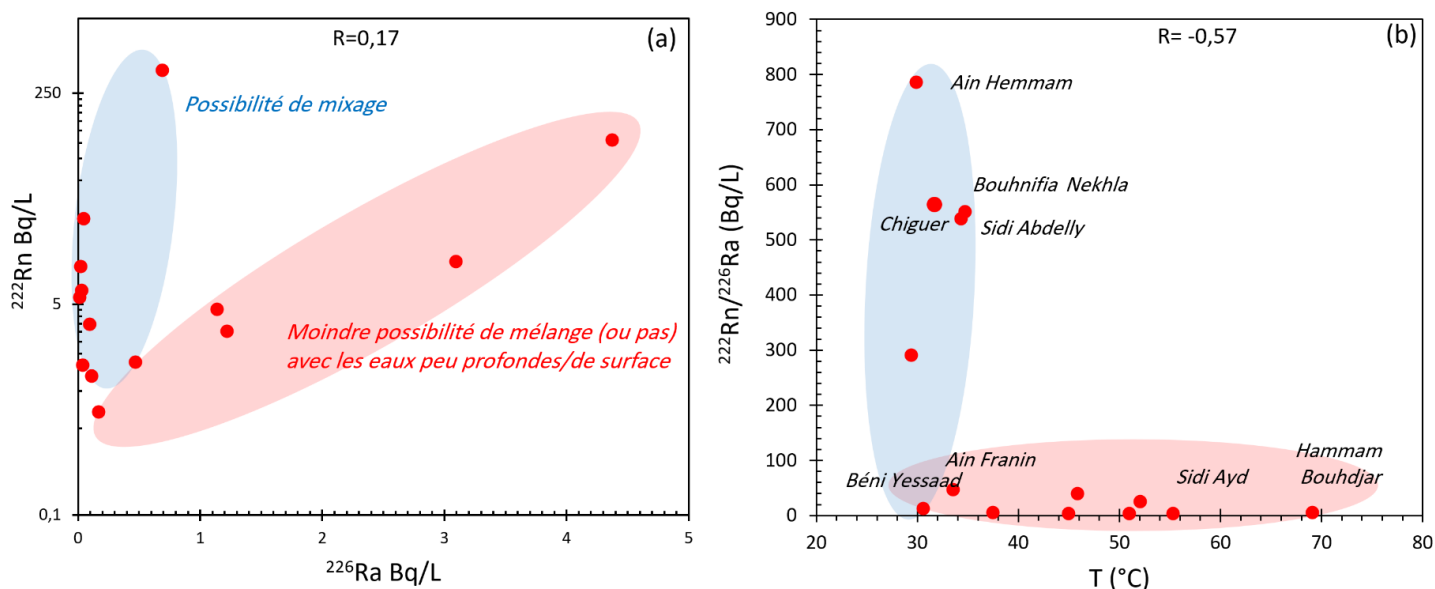


Fig. 63. ^{222}Rn vs ^{226}Ra (a) et Rapport $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$ vs la température de l'eau (b)

Les dépôts secondaires du Radium, en particulier lorsqu'ils se forment sur une surface par adsorption, produisent du Radon qui est facilement mobilisable dans l'eau car ces dépôts sont situés à l'interface eau-roche. Il en résulte souvent un coefficient d'émanation et des teneurs en Radon élevés (Fig. 64).

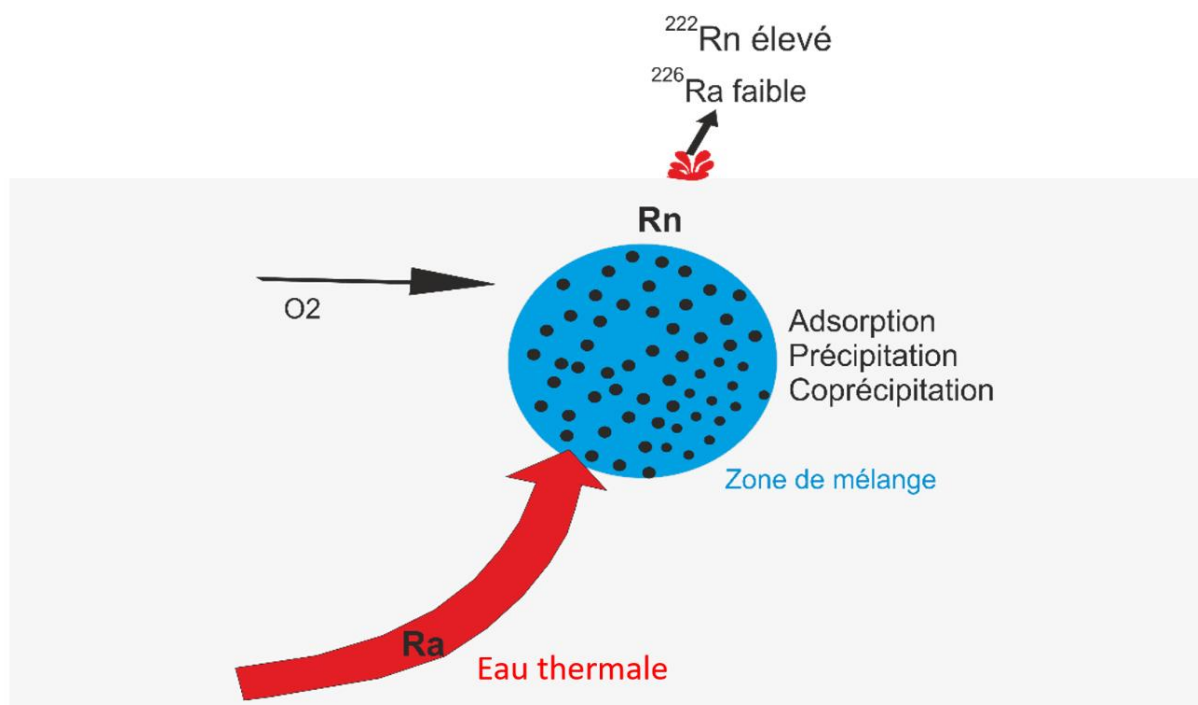


Fig. 64. Schéma expliquant les concentrations en radio-isotopes lors de l'ascension des eaux thermales et le mélange avec les eaux locales

IV.1.1.2. Rapport d'activité $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ et ^{228}Ra vs ^{226}Ra

L'étude des rapports d'activité du $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ dans les eaux souterraines pourrait donner des indications sur les activités du Radium dans les roches aquifères avec lesquelles l'eau souterraine est en contact (Kraemer et Reid, 1984 ; Vengosh et al., 2009).

Le rapport d'activité $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ est un proxy significatif qui peut être utilisé pour identifier la source des interactions Radium et eau-roche au sein de l'aquifère. Un rapport élevé indique un excès significatif de ^{228}Ra (Dickson et al., 1987 ; Szabo et al., 2005 ; Vengosh et al., 2009, Sherif et al., 2018 ; Stackelberg et al., 2018 ; Sherif et Sturchio, 2021), observé généralement dans les aquifères volcaniques. Par ailleurs, ce rapport a tendance à être inférieur à l'unité (<1) dans les aquifères carbonatés (Vengosh et al., 2009 ; Sturchio et al., 2001 ; Sherif et al., 2018 ; Sherif et Sturchio, 2021), ce qui est considéré comme un signe important pour déterminer l'origine géologique de ce radio-isotope dans les eaux. Au vu de la diversité des formations géologiques de la région, le rapport d'activité $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ observé est variable parmi les sources étudiées (Fig. 65). Il varie de 0,02 à 2,47. Cette variabilité est probablement due aux caractéristiques lithologiques et hydrogéochimiques différentes des aquifères hydrothermaux du nord-ouest algérien. Un rapport élevé $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ (>1) signalé dans trois échantillons (eaux d'Ain Franin, Beni Yessaad et Mentila), implique que la roche hôte peut avoir un rapport d'activité Th/U plus élevé ou un taux de décroissance différentiel des nucléides parents (c'est-à-dire ^{232}Th et ^{230}Th) dans les solides de l'aquifère. Le rapport $^{228}/^{226}\text{Ra}$ inférieur signalé dans toutes les autres sources thermales reflète l'abondance de matériaux carbonatés dans ces aquifères (Fig. 65), cela peut suggérer qu'une quantité du Radium provient de la dissolution du calcaire.

Le rapport d'activité $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ inférieur à l'unité peut également être contrôlé par le coefficient de désorption du Radium et le taux accru d'interactions eau-roche en raison de la température élevée des eaux (Chau et al., 2012, 2022 ; Nguyen et Nowak, 2021). Par conséquent, l'activité du ^{226}Ra est supérieure à celle du ^{228}Ra dans l'eau.

La relation entre ^{228}Ra et ^{226}Ra (Fig. 66a) montre un coefficient de corrélation modéré ($R=0.61$) pour tous les échantillons, ce qui s'explique par le fait qu'ils soient issus de différentes séries de décroissance radioactive (séries des ^{232}Th et ^{238}U , respectivement). Cette corrélation et le rapport moyen ($^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra} = 0,61$) indiquent que, pour la plupart des aquifères hydrothermaux du nord-ouest de l'Algérie, ce sont les carbonates qui seraient la source la plus importante de Ra. De ce fait, les aquifères à prédominance carbonatée, tels que les dolomies et les calcaires, ont tendance à générer du Radium à partir de l'interaction et du contact avec ces types de roches.

Ces aquifères sont enrichis en ^{238}U , ce qui favorise la production de ^{226}Ra en solution (Davidson et Dickson, 1986 ; Reynolds et al., 2003). Il a parfois été suggéré que le ^{228}Ra pourrait être

introduit dans l'eau par recul alpha à partir d'atomes de ^{232}Th insolubles adsorbés sur les parois de fractures calcaires (Sturchio et al., 2001). Le rapport d'activité de $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ peut donc nous donner une idée sur le rapport $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ dans les formations qui constituent les réservoirs. Le rapport d'activité de $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ dans les eaux souterraines dépend du rapport d'activité globale de $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ dans la roche hôte (Mheta and Sullivan, 2015). Dans les eaux souterraines, les concentrations d'activité des deux isotopes du Radium à vie longue (^{226}Ra et ^{228}Ra) et leur rapport ($^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$) sont corrélés et liés à leurs isotopes parents primordiaux (^{238}U , ^{232}Th , $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$) dans les aquifères (Nguyen et al., 2012) et pourraient être similaires aux rapports d'activité $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ dans les matériaux de l'aquifère (Tomita et al., 2010). Dans la plupart des systèmes aquifères, les rapports d'activité $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ dans les eaux souterraines imitent leurs rapports d'activité parents $^{232}\text{Th}/^{230}\text{Th}$ dans les solides de l'aquifère (Porcelli and Swarzenski, 2003; Reynolds et al., 2003; Tricca et al., 2000). Ainsi, cela signifie que l'activité de l'Uranium est supérieure aux activités du Thorium dans les aquifères hydrothermaux du nord-ouest algérien.

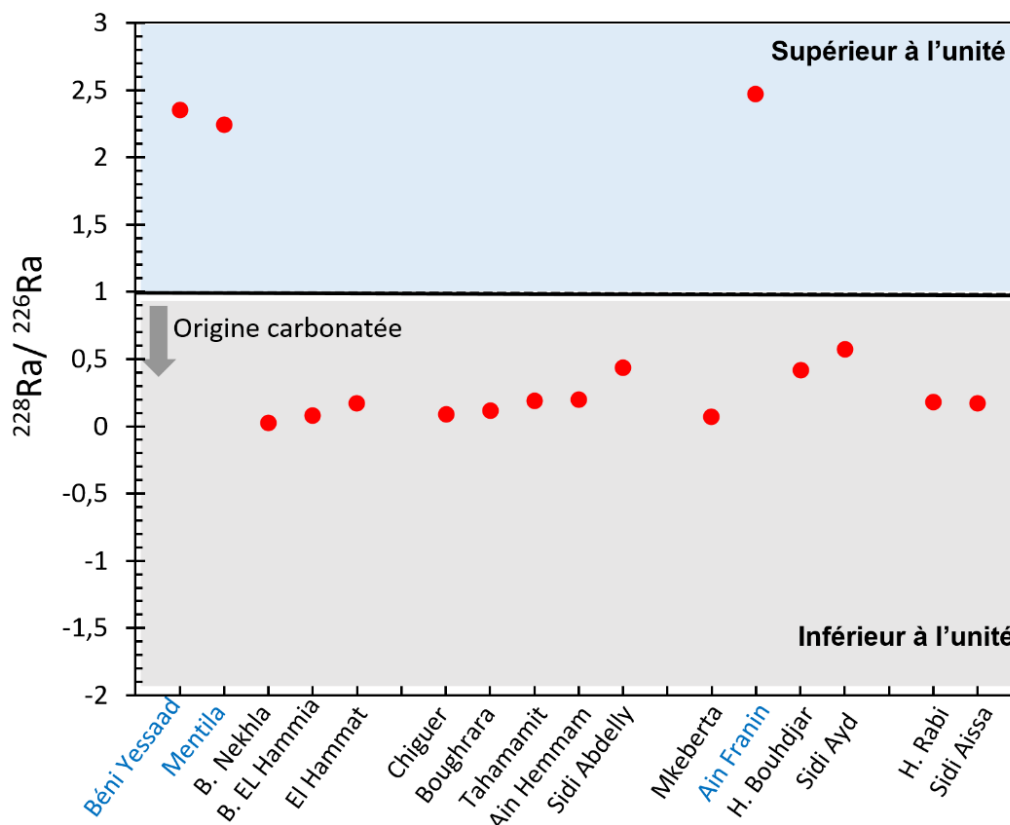


Fig. 65. Variabilité du rapport $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$

La source thermique sulfatée d'Ain Franin a le $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ le plus élevé par rapport aux autres types d'eau (eaux chlorurées et bicarbonatées). Cela pourrait suggérer la contribution du ^{228}Ra provenant des surfaces de roches altérées par l'acide et enrichies en ^{232}Th , qui peut fournir un ^{228}Ra plus élevé, idem pour Béni Yessaad et Mentila.

A proximité de l'environnement immédiat et à l'émergence de la source d'Ain Franin, il ya parfois des altérites, résultat d'altération des marnes du Miocène inférieur (abondance des hydroxydes de fer). Ce qui pourrait expliquer le rapport élevé ($^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$) au niveau de cette source. Dans ces environnements, l'eau peut être enrichie à la fois en ^{228}Ra et en ^{226}Ra par dissolution massive d'une petite quantité (quelques mg/L d'eau) d'hydroxyde de fer, soit en raison d'un environnement réducteur (par exemple en raison de la décomposition de la matière organique du sol) ou à la dissolution acide par l'eau enrichie en CO_2 du sol (Molina-porras, 2018).

L'eau peut être préférentiellement enrichie en ^{228}Ra par recul alpha des grains du sol et du réservoir/altérite, puisque ^{226}Ra et ^{228}Ra peuvent être éjectés vers le fluide par la désintégration de leurs parents ^{230}Th et ^{232}Th , respectivement.

Comme le ^{230}Th et le ^{232}Th ont des activités comparables, les nombres d'atomes de ^{228}Ra et de ^{226}Ra éjectés par recul alpha par unité de temps sont presque égaux, mais le rapport d'activité ($^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$) du Ra rejeté dans l'eau doit être initialement égal au rapport de leurs constantes de désintégration (c'est-à-dire 278), montrant que l'influence de ce processus est beaucoup plus importante sur l'activité du ^{228}Ra .

Comme mentionné ci-dessus (partie des résultats), les isotopes du Radium à vie longue (^{226}Ra et ^{228}Ra) montrent des activités plus élevées que les isotopes du Radium à vie courte (^{223}Ra et ^{224}Ra) à l'exception des quatre sources d'Ain Franin, Mentila, BeniYesaad et Mekeberta, avec des concentrations en ^{224}Ra plus importantes que ^{226}Ra . Lorsque les isotopes à courte durée de vie (^{223}Ra et ^{224}Ra) ont des abondances plus élevées que les isotopes à longue durée de vie ^{228}Ra et ^{226}Ra , cela signifie qu'il y a une adsorption rapide (de quelques minutes à plusieurs jours) du Radium sur les minéraux argileux et les oxydes (Krishnaswami, 1982).

Le ^{226}Ra , qui a une demi-vie plus longue que le ^{224}Ra ou le ^{228}Ra , a tendance à s'accumuler dans les eaux souterraines. La présence de ^{238}U à partir de minéraux carbonatés semble renforcer ce processus et entraîner une augmentation de la concentration de ^{226}Ra dans les aquifères étudiés. Ce processus peut expliquer l'abondance de ^{226}Ra dans tous les aquifères hydrothermaux carbonatés par rapport au ^{223}Ra , ^{224}Ra et ^{228}Ra , à l'exception des trois sources à rapport élevé ($^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$) qui peuvent provenir d'aquifères non carbonatés (Beni Yesaad, Mentila et Ain Franin). Les aquifères non carbonatés (ex. sableux, gréseux) pourraient être aussi la source d'isotopes du Radium, alors que le rapport d'activité $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ paraît être relativement élevé (Dickson et al., 1987 ; Szabo et al., 2005 ; Sherif et al., 2018 ; Stackelberg et al., 2018) . C'est probablement le cas des aquifères des sources Beni Yessaad, Mentila et Ain Franin.

Dans les réservoirs carbonatés hydrothermaux fracturés, si l'on considère que les taux d'interactions eau-roche (altération) sont lents comme c'est le cas avec certains aquifères captifs

minéralisés (Copenhaver et al., 1993 ; Reynolds et al., 2003), cela indique que le recul alpha est la principale source d'accumulation de ^{226}Ra dans une solution d'eau thermale.

IV.1.1.3. Rapport d'activité $^{224}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$ et ^{224}Ra vs ^{228}Ra

Le rapport entre les isotopes à courte durée de vie et à longue durée de vie ($^{\text{C}}\text{Ra}/^{\text{L}}\text{Ra}$) peut être utilisé pour estimer les taux d'apport ou d'élimination de Ra (Vinson et al., 2009). Puisque le ^{228}Ra est le radionucléide grand-parent du ^{224}Ra , son taux d'apport de recul devrait être identique à celui du ^{224}Ra .

Le ^{224}Ra et le ^{228}Ra appartiennent tous deux à la même série de désintégrations et sont donc tous deux affectés de la même manière par l'hétérogénéité de la distribution du ^{232}Th dans les matériaux aquifères. En l'absence de conditions de non-équilibre prévalant dans les eaux souterraines, le rapport d'activité $^{224}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$ correspondrait au rapport de production de la roche réservoir (c'est-à-dire égal à 1). Dans ce cas, toute variabilité spatiale du rapport d'activité $^{224}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$ dans les eaux souterraines résulterait uniquement du processus de recul alpha. Néanmoins, dans les systèmes d'eaux souterraines, la valeur d'équilibre séculaire en régime permanent de $^{224}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$ est considérée comme légèrement supérieure à l'unité (Krishnaswami et al., 1982 ; Tricca et al., 2001 ; Reynolds et al., 2003).

Les valeurs du rapport $^{224}/^{228}\text{Ra}$ pour la plupart des eaux thermales sont proches et supérieurs à ≈ 1 . La valeur la plus élevée ($^{224}\text{Ra}/^{228}\text{Ra} = 29,5$) se rencontre dans l'eau sulfatée de la source thermale de Mekeberta. La valeur moyenne du rapport d'activité $^{224}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$ est de 1,4 si l'on exclut les eaux thermales de Mekeberta et Chiguer. Les activités ^{224}Ra et ^{228}Ra dans les roches de l'aquifère devraient être en équilibre ($^{224}\text{Ra}/^{228}\text{Ra} = 1$). Ces rapports d'activité $^{224}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$ sont généralement supérieurs à l'unité. Cela a été expliqué par le recul des deux parents du ^{224}Ra , le ^{228}Ra et le ^{228}Th , qui sont adsorbés et continuent de fournir des nucléides fils dans les eaux souterraines (Davidson et Dickson, 1986 ; Krishnaswami et al., 1982).

Les deux isotopes du Radium de la chaîne de désintégration du ^{232}Th (^{224}Ra et ^{228}Ra) présentent une très bonne corrélation ($R = 0,98$) et suggèrent qu'ils sont tous deux introduits dans les eaux thermales par désintégration du ^{232}Th et que le ^{224}Ra est principalement fourni par le ^{228}Ra dissous (Fig. 66b).

De faibles rapports isotopiques à courte durée de vie et à longue durée de vie peuvent indiquer une source de Radium issue de la dissolution minérale primaire dans laquelle le Radium à courte durée de vie se désintègre plus rapidement que le taux de dissolution (Hammond et al., 1988). En moyenne, les rapports d'activité $^{224}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$ sont proches de la valeur d'équilibre de 1 (Fig. 66b). Cela indique probablement que (1) les sources de Radium sont largement réparties sur les surfaces de fracture ou sont, au moins, très proches des sources prélevées, plutôt que d'être

mobilisées dans une phase antérieure d'évolution des eaux souterraines qui permettrait une désintégration significative du ^{224}Ra et (2) les taux des processus critiques de mobilisation du Radium ne génèrent pas de grands changements dans le $^{224}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$.

L'activité volumique du ^{224}Ra dans les eaux thermales est généralement légèrement supérieure à celle du ^{228}Ra , ce qui confirme que ce phénomène est dû à l'effet de recul alpha. Dans la chaîne de désintégration du ^{232}Th , le ^{228}Ra est suivi d'une seule désintégration alpha tandis que le ^{224}Ra est suivi de deux désintégrations alpha.

Ce rapport ($^{224}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$) peut être modifié au cours de la circulation de l'eau (Rihs et Condomines, 2002). Compte tenu du temps nécessaire à l'eau pour remonter de l'aquifère à la surface, il est susceptible d'être long par rapport à la demi-vie du ^{224}Ra ($t_{1/2} = 3,6$ j), ce qui rend le rapport $^{224}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$ difficile à interpréter dans ce cas.

La concentration excessive de ^{224}Ra indique que la production près de la surface à partir de ^{228}Th est une source importante, et dans certains cas, elle domine. Cela peut être l'exemple des sources thermales de Bouhnifia nekhl, Mekeberta, Sidi Aissa et Chiguer. Cela signifie que l'équilibre chimique pour la désintégration du ^{224}Ra à l'échelle du temps ($t_{1/2} = 3,6$ j) n'est pas assez rapide pour maintenir l'équilibre isotopique entre l'eau et la roche (Sturchio et al., 1993). Les valeurs élevées de ^{224}Ra par rapport à son élément père (^{228}Ra) peuvent avoir une autre signification, comme considérée par certains auteurs (e.g Davidson and Dickson, 1986) : le ^{228}Ra éjecté dans l'eau est la source du ^{228}Th et ^{224}Ra est hautement absorbable dans l'aquifère ; il en résulte des teneurs élevées en ^{224}Ra dans les eaux souterraines.

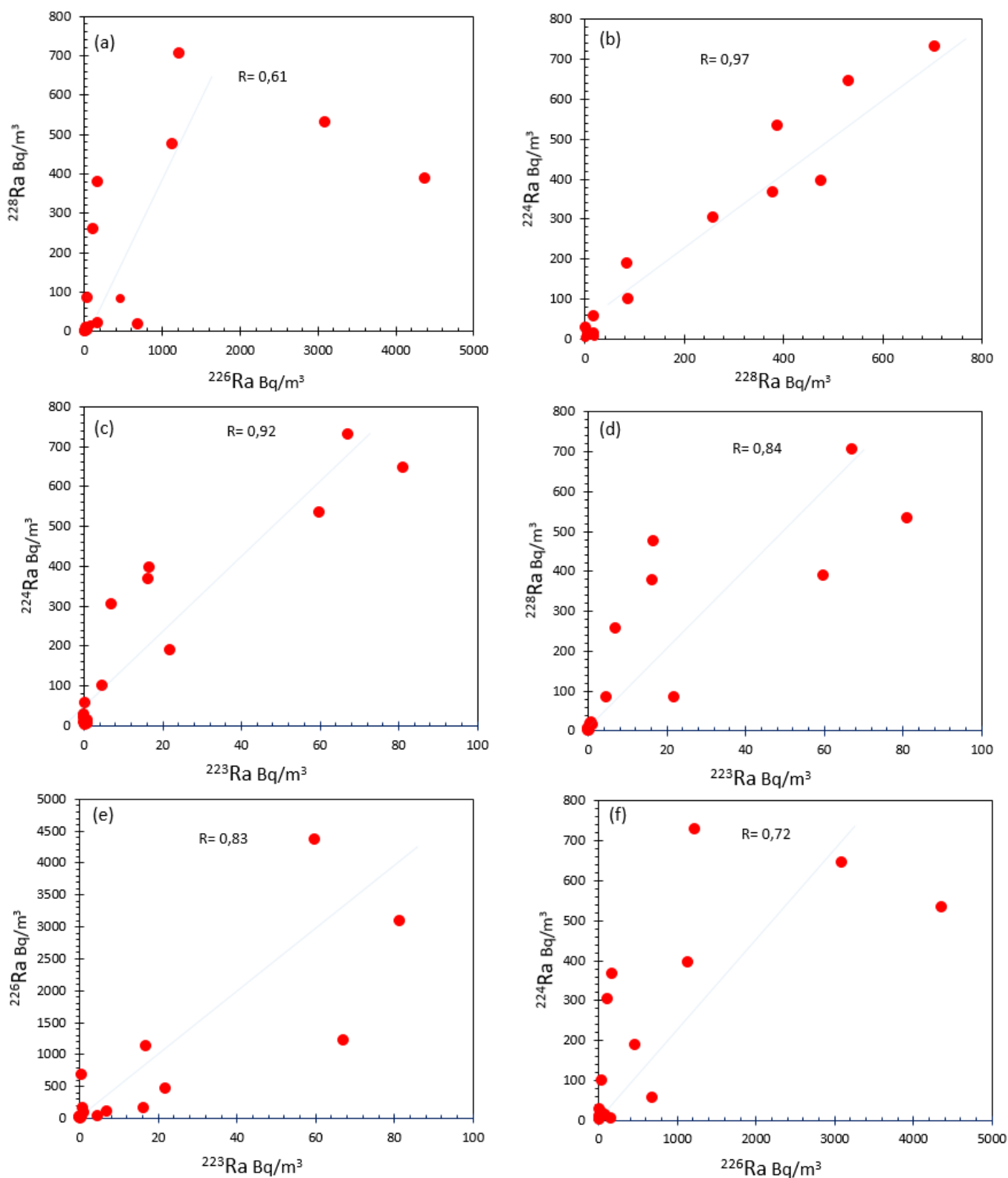


Fig. 66. Relation et corrélation entre les quatre isotopes du Radium

IV.1.1.4. Rapport d'activité $^{223}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ et ^{223}Ra vs ^{226}Ra

Le ^{223}Ra et le ^{226}Ra sont tous deux produits par 3 désintégrations alpha. Ils montrent une bonne corrélation, avec un coefficient $R=0,83$ (Fig. 66e), ce qui pourrait suggérer un comportement similaire de ces radionucléides dans les eaux thermales, quelles que soient leurs concentrations et leur période de vie.

Le rapport d'activité $^{223}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ de la majorité des sources d'eau est considérablement faible, ce qui est logique, étant donné que les concentrations en ^{223}Ra sont plus limitées. Cette faible concentration est en grande partie due à la faible abondance de ^{235}U qui est à l'origine des chaînes de désintégration. Ce dernier (^{235}U) est le nucléide parent de ^{223}Ra , par rapport à ^{238}U , qui est l'isotope parent de ^{226}Ra . En conséquence, la production de ^{223}Ra à partir de ^{235}U est moins importante que celle de ^{226}Ra à partir de ^{238}U , ce qui conduit à des concentrations plus faibles de ^{223}Ra dans les sources d'eau. Ceci est probablement dû à une dissolution substantielle des minéraux porteurs de Radium et/ou une désorption du Ra des minéraux argileux et des oxydes. Étant donné que dans une dissolution pure d'un calcaire en équilibre radioactif, le rapport d'activité naturel de la série de désintégrations primordiale $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ est égal à 0,046 (Vengosh et al., 2022), on peut supposer qu'en équilibre, les rapports des produits de désintégration, ^{223}Ra de la série de désintégrations ^{235}U et ^{226}Ra de la série de désintégrations ^{238}U , seraient égaux à ce rapport d'activité en équilibre dans les roches aquifères. Parfois, dans les eaux souterraines, ces rapports sont beaucoup plus élevés que les valeurs d'équilibre (Porcelli et Swarzenski, 2003). Les rapports d'activité $^{223}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ dans les eaux thermales étudiées sont systématiquement faibles (varient de 0 à 0,13), indiquant un enrichissement très modéré en ^{223}Ra , comparé à des enrichissements plus élevés ($> 0,1$) mesurés dans les eaux d'aquifères sableux (e.g Davidson et Dickson, 1986) ou certaines eaux minérales carbonatées (Durecová et al. , 2006). Ce faible rapport (valeur moyenne de 0.03) peut indiquer que le ^{226}Ra dans les eaux a atteint son état d'équilibre en raison de sa longue demi-vie. Par contre, des rapports $^{223}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ élevés peuvent être trouvés localement lorsque le ^{226}Ra n'a pas atteint son équilibre après une recharge des aquifères (Davidson et Dickson 1986 ; Martin et Akber 1999).

Globalement, les relations entre les isotopes du Radium, ^{224}Ra vs ^{223}Ra , ^{228}Ra vs ^{223}Ra et ^{226}Ra vs ^{224}Ra (Fig. 66c, d et f) montrent généralement de bonnes corrélations, ce qui confirme que les nucléides du Radium ont un comportement plus ou moins similaire. Cependant, la vitesse de dissolution, la lithologie des aquifères, la demi-vie de l'isotope et le taux de désintégrations jouent un rôle majeur dans la variation de leurs concentrations. Les rapports mesurés sont probablement influencés par les différentes voies d'écoulement des eaux souterraines qui dépendent des caractéristiques lithologiques des réservoirs hydrothermaux, des temps de séjour

et les réactions d'adsorption/désorption ou de dissolution/précipitation des minéraux riches en U-Th-Ra (argiles, hydroxydes, sulfates et oxydes). La large gamme observée d'activités de Radium et de Radon ainsi que leurs ratios dans les sources étudiées reflètent l'hétérogénéité des contextes géologiques, hydrogéologiques et structuraux, affectant les réservoirs hydrothermaux du nord-ouest de l'Algérie. Par conséquent, comme le montrent les cartes de répartition spatiale des activités du Radium et du Radon (Cf. Fig. 54, 55, 56, 57 et 58), les radionucléides ont des activités plus élevées dans les eaux thermales d'Ain Temouchent et de Mascara. Les aquifères hydrothermaux issus de formations calcaires et dolomitiques, faillées et fracturées, telles les sources thermales de Bouhnifia-Nekhla, El-Hamia et El Hamat à Mascara, et Sidi Ayd à Hammam Bouhdjar, peuvent constituer des conduits préférentiels de remontée d'eau thermale vers l'émergence en surface avec des concentrations importantes de radionucléides dissous du Radium et du Radon.

L'investigation hydrogéochimique profonde sur les variations des teneurs radio-isotopiques des eaux étudiées viendra compléter nos précédents résultats. Cette partie traitera des processus qui contrôlent la géochimie des isotopes radioactifs dans les eaux souterraines.

V. Contrôle des radionucléides par processus hydrogéochimiques

De nombreux processus peuvent contribuer à la concentration des radionucléides dans les eaux souterraines. Outre les caractéristiques lithologiques et hydrologiques de l'aquifère, cela dépend également des caractéristiques chimiques, des propriétés physico-chimiques des eaux, des temps de séjour ainsi que de la concentration et de la distribution des nucléides parents (U et Th) dans les solides de l'aquifère (Sturchio et al., 2001, Sherif et al., 2018 ; Vengosh et al., 2022).

Le Radium est principalement introduit dans les eaux souterraines par le recul alpha des radionucléides parents (c'est-à-dire les isotopes Th). Ce processus est fonction de l'abondance relative de l'isotope parent de Ra dans les matériaux de l'aquifère ainsi que de l'emplacement par rapport à l'interface solide-fluide. Des études ont indiqué que la distance de recul du radionucléide parent par rapport à la surface du minéral était de 30 à 40 nm (Davidson et Dickson, 1986 ; Sun et Semkow, 1998). Le Radium peut également pénétrer dans les eaux souterraines par la désintégration de l'Uranium et du Thorium dissous, la désorption des surfaces des aquifères, la dissolution des solides de l'aquifère et les réactions d'échange de cations. (Krishnaswami et al., 1982; Ku et al., 1992; Porcelli and Swarzenski, 2003). La caractéristique chimique des eaux souterraines joue un rôle important dans les processus qui affectent la mobilisation et la rétention du Radium et donc l'occurrence globale du Radium. Dickson (1990) a suggéré que la chimie des eaux souterraines contrôle la mobilisation du Radium et est ainsi un facteur important pour la présence du Radium en forte teneur dans les eaux quelles que soient les concentrations d'U et de

Th dans les roches aquifères. Dans certains cas, le Radium présent dans les eaux souterraines est affecté par des activités anthropiques qui modifient les conditions chimiques des eaux souterraines, telles que la salinisation (Bouchaou et al., 2017 ; Faraj et al., 2020 ; Krishnaswami et al., 1991 ; Tomita et al., 2010 ; Vengosh, 2014 ; Vinson et al., 2018) ou la recharge artificielle des eaux souterraines (Vinson et al., 2018).

Le Radium est très réactif chimiquement, et une fois qu'il se présente en solution, le processus de sorption-désorption avec les surfaces de l'aquifère et de co-précipitation avec des sulfates insolubles dans l'eau, contrôle les concentrations de Radium dans les aquifères. L'abondance des oxyhydrures et des argiles est un facteur principal de la capacité de sorption du Radium dans les solides de l'aquifère, la salinité, le pH, le redox, la température jouent également un rôle qui affecte les teneurs en Radium (Sturchio et al., 2001, Krishnaswami et al., 1991). Le Radium se présente principalement sous forme de Ra^{2+} cationique et, contrairement à l'Uranium, la spéciation du Radium n'est pas directement affectée par les processus redox. En revanche, le Radon en tant que gaz inerte ne contribue pas aux réactions chimiques. Par conséquent, sa propriété ne permet pas aux interactions chimiques d'affecter son comportement. L'enrichissement du ^{222}Rn par rapport au ^{226}Ra peut être attribué à l'élimination d'une partie du Ra par adsorption et/ou coprécipitation avec d'autres phases minérales comme schématisé par la figure 64 ci-dessus. Les processus physiques sont le seul facteur qui contrôle sa distribution d'activité (Roba et al., 2010). Les résultats confirment pourquoi les concentrations de ^{222}Rn dans les eaux thermales ne sont pas associées à l'activité de son parent ^{226}Ra (Fig. 63a).

Les objectifs de cette partie sont d'identifier les mécanismes de mobilité de Ra et Rn dans les eaux souterraines thermales et de déterminer les influences hydrochimiques sur les activités Ra et Rn observées.

V.1. Distribution et mobilité du Radium

V.1.1. Relation radionucléides, température et acidité de l'eau

La température et la composition chimique de l'eau thermale du nord-ouest de l'Algérie affectent probablement les activités mesurées du Radium et du Radon dans ces eaux. La distribution des activités du Radon et des isotopes du Radium en fonction de la température est illustrée par la figure 67. Une corrélation relativement bonne et positive entre la température des eaux échantillonnées et les isotopes du Radium peut être remarquée. Les coefficients de corrélation entre T°C et ^{224}Ra , ^{226}Ra et ^{228}Ra sont respectivement de 0,81; 0,77 et 0,83 (Fig. 67a, b et c).

Ces résultats indiquent une augmentation des activités des isotopes du Radium en fonction de la température des sources thermales. Cela est dû à l'augmentation de l'interaction eau-roche qui

libère du Radium dans les eaux souterraines. Les eaux riches en ^{224}Ra , ^{226}Ra et ^{228}Ra sont parmi les plus chaudes ($T > 35^\circ\text{C}$). Ces résultats suggèrent une augmentation relative de la solubilité du Radium avec la température d'une part, et au fait qu'une augmentation de cette dernière favorise le processus de lessivage du Radium dans l'interphase roche-eau et celui de l'interaction chimique en général.

Les processus thermiques peuvent influencer la migration et la répartition des concentrations de Radium dans les eaux thermales. La présence de gradients géothermiques élevés a entraîné une augmentation de la température de l'eau et par conséquent une augmentation du taux de dissolution des minéraux radioactifs dont les isotopes du Radium. La température élevée est donc un facteur qui peut jouer un rôle dans le comportement du Radium, car les coefficients d'adsorption doivent diminuer avec l'augmentation de la température de l'eau (Zukin et al., 1987). En revanche, le ^{222}Rn ne présente pas le même comportement que les isotopes ^{224}Ra , ^{226}Ra et ^{228}Ra avec la température de l'eau. En effet, le ^{222}Rn montre une mauvaise corrélation avec la température ($R = -0,3$) (Fig. 67d). Les sources les plus chaudes avec dégagement de vapeur, comme les eaux thermales de Hammam Boudhjar et Sidi Ayd ($69,1$ et $55,3^\circ\text{C}$), Hammam Rabi et Sidi Aissa ($45,8$ et 45°C) ont des activités ^{222}Rn inférieures à celles des eaux thermales de la région de Tlemcen, avec des teneurs en ^{222}Rn élevée à basse température.

Bouhnifia Nekhla est la source thermale la plus radioactive en Radon ($377155,77 \text{ Bq/m}^3$). Cette source a une température relativement plus basse que celle des autres sources. Cela implique que le processus d'ébullition de l'eau dans les sources à haute température diminue la solubilité du Rn et améliore sa libération de l'eau dans l'air. La température de l'eau montre un léger effet sur la solubilité de la concentration de Radon dans les eaux, et avec l'augmentation de la température, la solubilité du Radon baisse. Néanmoins, pour être efficace, le dégazage doit avoir lieu dans des fractures complètement ouvertes ou dans une zone phréatique bien ventilée. Ces conditions hydrogéologiques n'étant pas atteintes dans le cas de ces sources (systèmes thermiques profonds saturés), nous considérons que le Radon perdu par dégazage est probablement faible dans les échantillons analysés.

Des activités faibles de ^{222}Rn ont été mesurées dans certaines eaux géothermiques les plus chaudes d'Islande (Óskarsson et Ásgeirsdóttir, 2017), et la concentration de Radon dans l'eau thermale semble diminuer à mesure que la température augmente (Belgacem et al, 2015). Par conséquent, dans l'eau froide, le Radon est très soluble, mais sa solubilité diminue lors de l'augmentation de la température (Tabar & Yakut 2014).

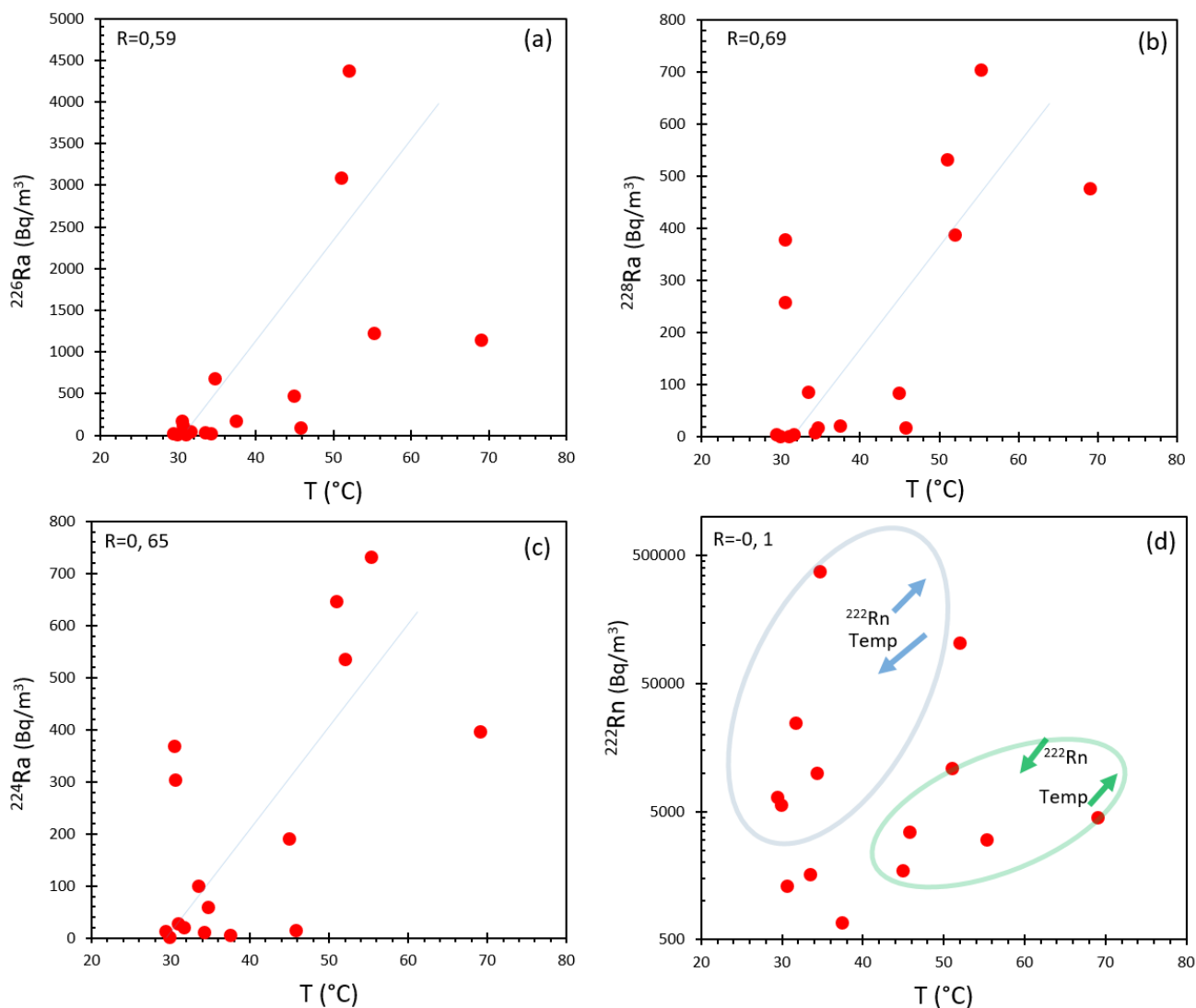


Fig. 67. Ra et Rn vs Température

L'acidité de l'eau (pH) est un paramètre très important pour la mobilité et la distribution du Radium dans les eaux souterraines. Les concentrations en isotopes du Radium, en particulier ^{226}Ra et ^{228}Ra , sont plus élevées dans les échantillons d'eau thermale acide ($\text{pH} < 7$) (Fig. 68). C'est le cas des eaux thermales de Sidi Ayd, et El Hammat, avec des valeurs de pH de 6,31 et 6,32 respectivement, qui présentent le plus fort taux de radioactivité. Pour tous les autres échantillons, les activités des isotopes du Radium sont relativement élevées dans les eaux légèrement acides à proches de la neutralité, et faibles dans les eaux basiques, à l'exception de la source thermale El-Hamia. Le Radium devient généralement plus mobile dans l'aquifère lorsque la valeur du pH diminue. À mesure que l'acidité des eaux souterraines augmente, les ions hydrogène abondants entrent en compétition avec Ra pour les sites d'adsorption dans les solides de l'aquifère (Szabo et al., 2005). Cet effet est probablement la raison pour laquelle les activités Ra les plus élevées sont mesurées dans les échantillons avec les valeurs de pH les plus faibles

(e.g Sidi Ayd et El Hamat). Étant donné que la capacité de sorption et d'échange des sédiments qui composent les aquifères hydrothermaux est extrêmement faible, même une petite augmentation de la teneur en ions hydrogène libres (diminution du pH) peut entraîner une diminution substantielle de la capacité de sorption (et d'échange).

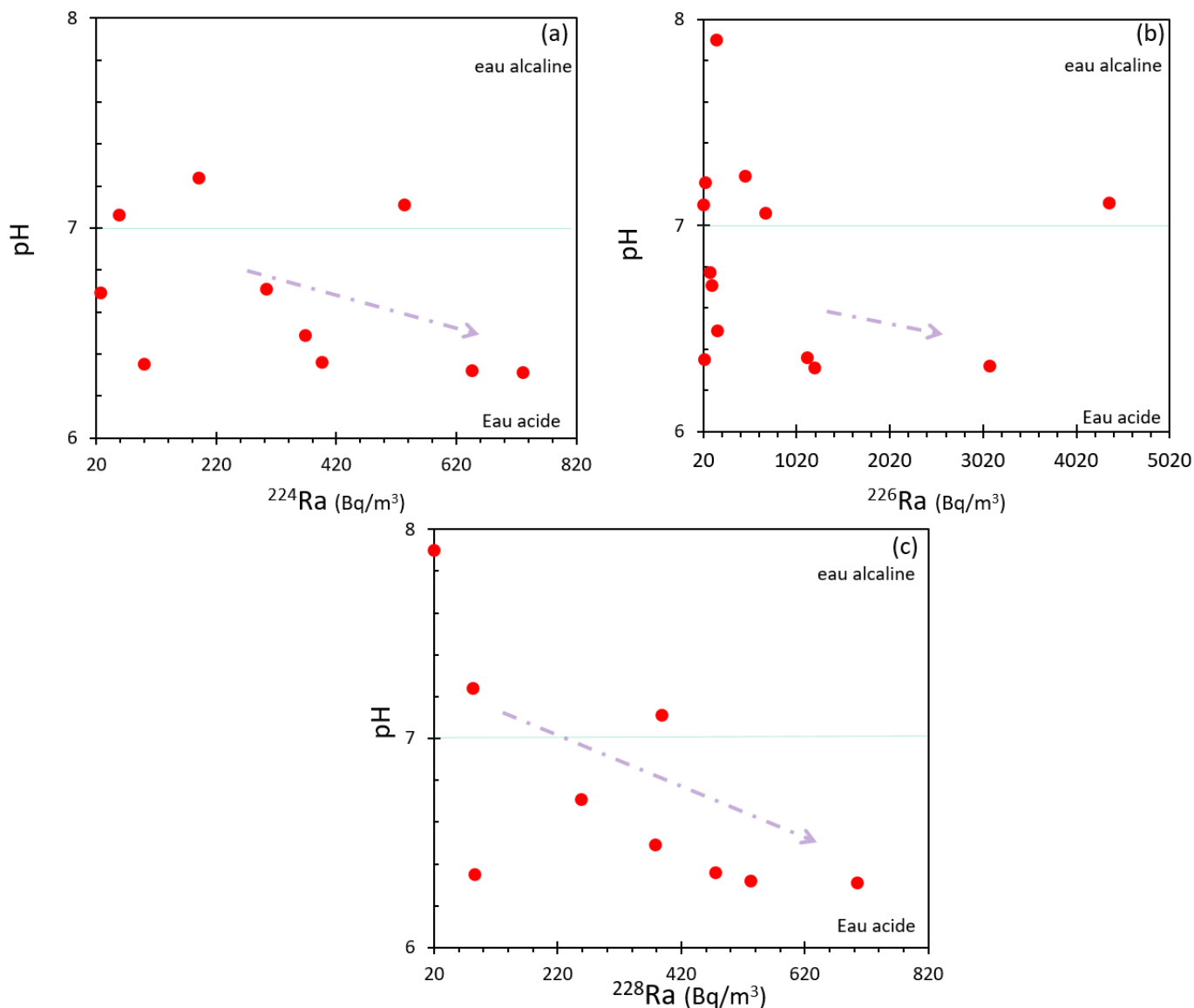


Fig. 68. ^{224}Ra , ^{226}Ra et ^{228}Ra vs pH (a, b et c)

V.1.2. Processus de la salinité et des éléments majeurs sur les radionucléides

Tout comme le pH, la salinité est un facteur important qui contrôle les activités de Ra dans les eaux souterraines. Elle pourrait contrôler les concentrations d'activité du Radium, en freinant l'adsorption du Radium sur les solides de l'aquifère. L'augmentation des solutés dissous en solution a tendance à augmenter la mobilité du Radium en raison de l'échange compétitif avec des ions similaires, ce qui réduit la capacité d'adsorption des matériaux aquifères (Sturchio et al., 2001; Szabo et al., 2012; Vinson et al., 2013 ; Sherif et al., 2018 ; Sherif et Sturchio 2021).

Aucune relation n'a été remarquée entre les isotopes du Radium et la salinité dans les eaux étudiées. Les faibles corrélations observées entre les quatre isotopes du Radium et la TDS des eaux étudiées suggèrent que les variations de la salinité dans les aquifères et ses effets sur la sorption/désorption de Ra ne sont pas la cause dominante ou la seule cause des variations de ^{223}Ra , ^{224}Ra , ^{226}Ra et ^{228}Ra (Fig. 69a, b, c et d). Tous les isotopes du Radium (longue et courte demi-vie) ont le même comportement vis-à-vis de la salinité de l'eau, ce qui démontre que le processus d'adsorption n'est pas lié au temps de demi-vie, mais au chimisme de l'eau. Même si le Radium reste mobile dans l'aquifère plusieurs années (ex ^{226}Ra), il n'entre pas en compétition avec les ions dissous sur les surfaces aquifères. Cela dépend peut-être de la lithologie des formations aquifères. Par conséquent, il en ressort que la matrice aquifère des réservoirs étudiés n'est pas caractérisée par une lithologie qui favorise l'adsorption sur ses surfaces. La faible abondance des minéraux argileux et des oxydes de Fe et de Mn, qui fournissent des sites d'adsorption pour le Ra dans l'aquifère, pourrait également expliquer les variations observées du ^{226}Ra (Vengosh et al., 2009 ; Sherif et Sturchio 2021). En effet, des concentrations élevées en isotopes du Radium dans les eaux du nord-ouest de l'Algérie peuvent apparaître dans les eaux thermales à minéralisation modérée.

Les eaux bicarbonatées présentent une activité relativement faible en Radium par rapport à d'autres types d'eau. Ceci est probablement dû à leur minéralisation relativement faible, ce qui est confirmé par les faibles taux de désorption de Ra des surfaces minérales ou une plus faible abondance de nucléides parents du Radium dans l'aquifère.

Des concentrations élevées dans certains aquifères de métaux alcalino-terreux dissous comme le calcium et le magnésium rempliront les sites d'adsorption les rendant indisponibles pour le Radium, entraînant une augmentation du Radium dissous (Szabo et al., 1992 ; Sturchio et al., 2001 ; Vinson et al., 2009). En revanche, cette affirmation ne s'applique pas aux systèmes hydrothermaux étudiés. Les concentrations de Calcium et de Magnésium dissous varient de 40 à 1103 mg/l et de 32,3 à 137,4 mg/l respectivement. Ces éléments alcalino-terreux ont montré une faible corrélation avec les isotopes du Radium (Fig. 70). Il n'y a pas de relation directe qui relie les éléments alcalino-terreux (Ca^{2+} et Mg^{2+}) au Radium ; ce qui signifie qu'il n'y a pas de compétition à la surface de l'aquifère entre le ^{224}Ra , ^{226}Ra , ^{228}Ra et ces éléments. Dans les réservoirs hydrothermaux du Nord-Ouest de l'Algérie, les éléments alcalino-terreux n'affectent pas le comportement du Radium, car ce dernier n'entre pas en compétition avec eux pour les sites d'adsorption. Par conséquent, ils ne contrôlent pas sa concentration dans l'eau, le Radium étant très mobile.

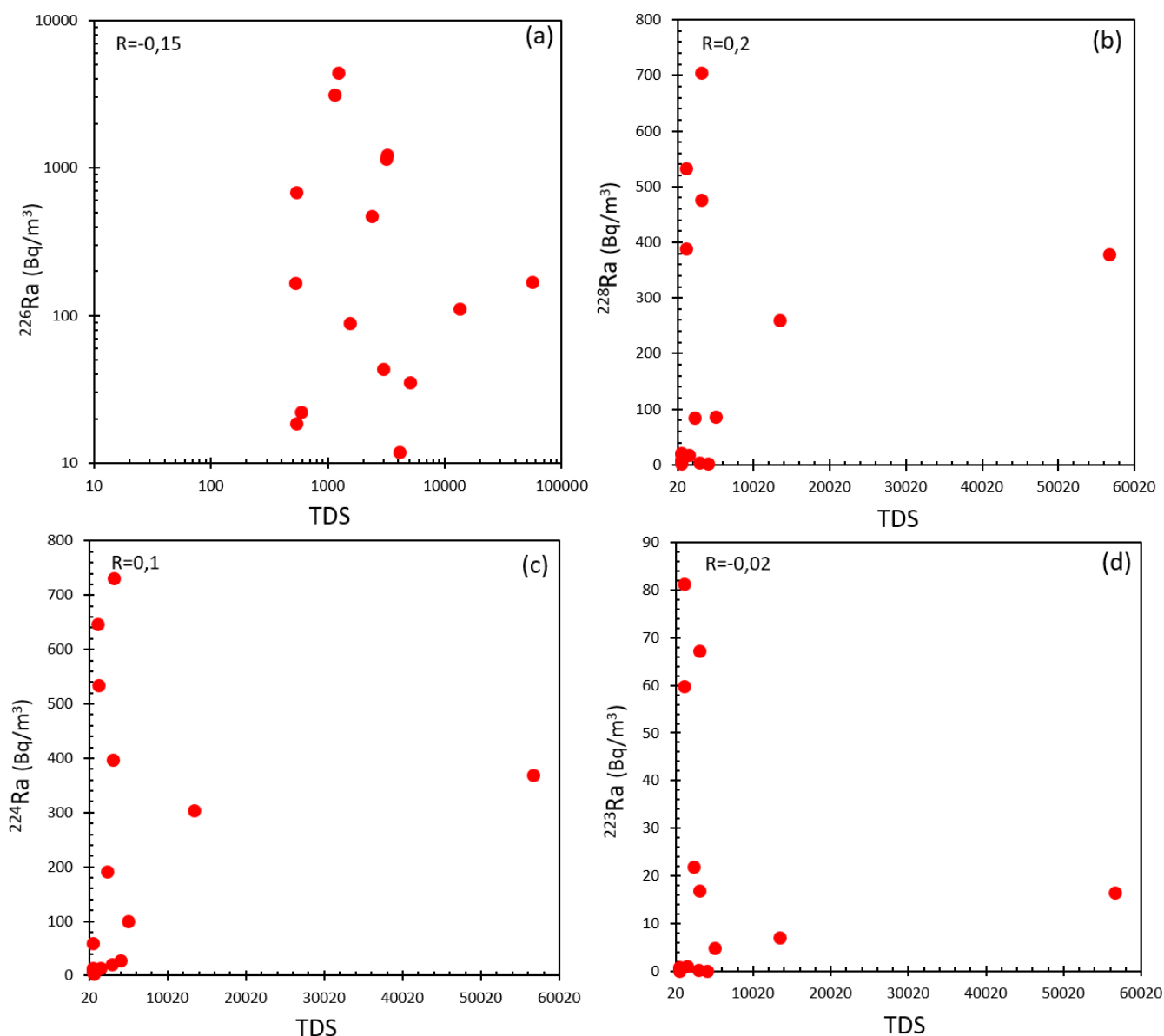


Fig. 69. Les isotopes du Radium vs la salinité de l'eau

Les calcaires composent principalement les aquifères des systèmes hydrothermaux du nord-ouest algérien à faible abondance d'argiles, dont il est un contenu important pour l'adsorption du Radium et pour son facteur de mobilité (Vengosh et al., 2009). Il est donc possible que les sites d'adsorption limités soient susceptibles de produire des eaux souterraines riches en Radium.

Les activités de Ra ainsi que les cations alcalino-terreux divalents (i.e. Ca²⁺ et Mg²⁺) peuvent être éliminées de la solution lorsqu'elles s'adsorbent sur des surfaces minérales argileuses chargées négativement, déplaçant ainsi les cations alcalins monovalents (i.e. Na⁺ et K⁺). Ces réactions augmentent généralement les rapports molaires Na⁺/(Ca²⁺+Mg²⁺) et Na⁺/Cl⁻ dans les eaux souterraines (Appelo, 1994 ; Oden et Szabo, 2016 ; Stackelberg et al., 2018 ; Sherif et Sturchio, 2021). Les échantillons d'eau étudiés ont un rapport molaire Na⁺/(Ca²⁺+Mg²⁺) médian de 2,66

avec un seul échantillon ayant une valeur > 15 (la source Mentila), tandis que la médiane des rapports molaires Na^+/Cl^- est de 0,71, avec un seul échantillon dépassant 1 (source Hammam Boughrara). Ces résultats indiquent que les réactions d'échange cationique ne sont pas un contrôle significatif du Radium dissous dans ces systèmes hydrothermaux ; ce qui explique la faible abondance des minéraux argileux dans ces matériaux aquifères.

Les réactions de sorption des isotopes du Radium à la surface de l'aquifère se produisent en quelques minutes à quelques jours (Krishnaswami et al., 1982). De plus, le temps de réaction est suffisant pour le Radium à longue durée de vie, ce qui suggère que le processus d'adsorption-désorption n'affecte pas ou ne contrôle pas de manière significative les activités du Radium des sources thermales du nord-ouest de l'Algérie. Ces aquifères hydrothermaux, en particulier ceux de la région d'Ain Temouchent, Mascara et Saida, sont considérés comme un milieu favorable à la présence des isotopes du Radium (^{224}Ra , ^{226}Ra et ^{228}Ra), car l'activité est élevée et aucun processus d'adsorption ne peut la contrôler. En revanche, les faibles activités du Radium montrées par les eaux thermales bicarbonatées de Tlemcen sont vraisemblablement attribuées à leur faible minéralisation. Ceci est confirmé par un faible taux de désorption du Radium des surfaces minérales ou la plus faible abondance des nucléides parents Ra dans les matériaux de l'aquifère (Sherif et Sturchio 2018).

En raison des caractéristiques carbonatées des aquifères hydrothermaux de la région d'étude, la faible teneur en minéraux argileux et en oxydes dans la matrice aquifère hautement perméable entraîne un manque de sites d'adsorption et donc une capacité d'adsorption limitée.

Le recul continu des nucléides de Radium des solides de l'aquifère vers la phase aquatique n'est pas contrecarré par une rétention efficace par adsorption (Vengosh et al., 2009), ce qui entraîne des teneurs élevés en Radium dans l'eau souterraine.

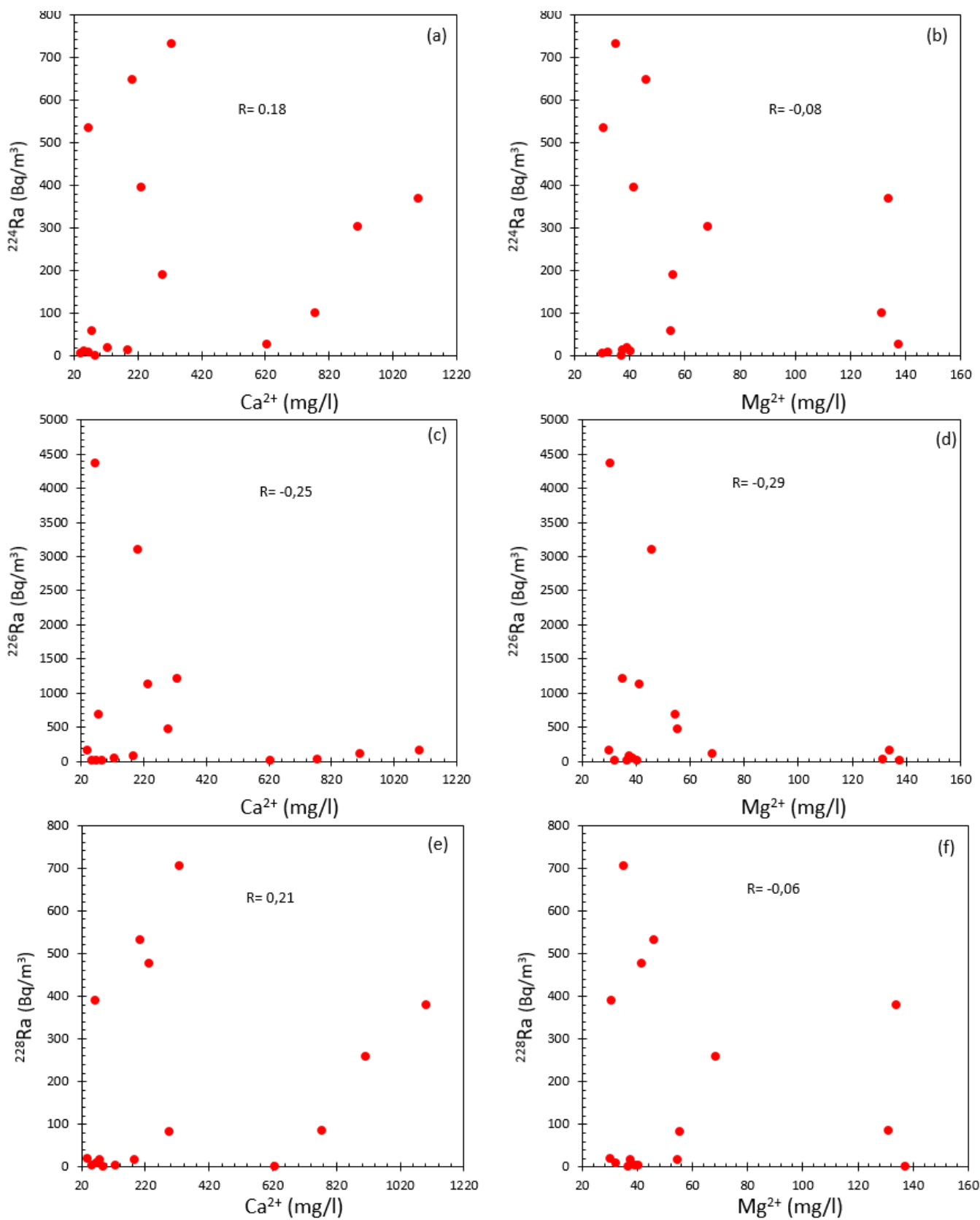


Fig. 70. Les alcalino-terreux (Ca^{2+} et Mg^{2+}) vs ^{224}Ra (a et b), ^{226}Ra (c et d) et ^{228}Ra (e et f)

VI. Relation entre la tectonique et l'occurrence de la radioactivité

L'hydrogéologie des systèmes hydrothermaux du nord-ouest algérien est connue par de nombreuses manifestations tectoniques et la circulation de leurs eaux thermales se fait principalement à travers des systèmes de failles comme mentionné précédemment dans le chapitre II. La radioactivité de ces systèmes hydrothermaux est faible dans certains cas, moyenne à élevée dans d'autres (Cf. [tableau 9](#)). Les niveaux de radioactivité de ces systèmes peuvent être dans certaines mesures attribués à la radioactivité des roches de l'aquifère réservoir. La présence de ^{222}Rn dans les systèmes hydrothermaux, en particulier en forte activités, est associée aux formations rocheuses calcaires et dolomitiques du nord-ouest de l'Algérie.

Le comportement du Radon est déterminé par des processus physiques et non par des interactions chimiques. Cependant, divers mécanismes pourraient influencer la distribution du Radon dans les eaux souterraines à la surface, tels que la lithologie, les fractures et les aspects des linéaments qui peuvent jouer un rôle de contrôle de la distribution et de l'accumulation du Radon ([Sukanya et al., 2021](#)).

La combinaison de la distribution spatiale des concentrations du Radon avec l'historique de la sismicité du nord-ouest de l'Algérie ([Fig. 71](#)), en utilisant des données sismiques de 1700 à 2016 ([Belayadi et al., 2017](#)), ont montré que des activités élevées de ^{222}Rn sont également localisées au niveau des zones à fortes concentrations d'activités sismiques (exemple des sources Bouhnifia-Nekhla et El-Hamia (région de Mascara)). Ces résultats peuvent s'expliquer par une remontée du gaz Radon à travers les fissures des roches, causées par les tremblements de terre, et conférer ainsi aux eaux souterraines une radioactivité élevée. En conséquence, on en déduit que la tectonique locale, comme les systèmes de failles, favorise la migration rapide du Radon de la profondeur vers la surface et facilitent sa remontée.

De fortes concentrations de ^{222}Rn apparaissent à proximité des failles, ce qui renforce l'accumulation de ^{222}Rn dans les eaux géothermiques ([Wang et al., 2017](#)). À travers les fractures des formations géologiques (failles, canaux, grottes et fissures), le Radon peut donc facilement migrer, ce qui entraîne son absorption et pénètre dans les eaux souterraines ([Arabi et al., 2016](#)). La relation entre la roche et le Radon n'est pas toujours simple là où les fractures et la perméabilité peuvent être un facteur d'influence positive de l'augmentation du Radon. Dans les zones géothermiques, les teneurs en Radon sont plus élevées le long des lignes tectoniques ([Erees et al., 2006](#)) et son émanation est fortement augmentée dans les eaux rocheuses à travers les structures tectoniques ([Przylibski, 2000](#)).

Le Radon a une courte demi-vie ($t_{=1/2}$ 3,825 jours), durant laquelle ce gaz est capable de migrer à une distance limitée de sa source à la surface. Ceci peut également être un bon indicateur de la proximité de la source de radioactivité des réservoirs hydrothermaux.

Selon le gradient géothermique du Nord-Ouest algérien, la température augmente de 2,92° à 4,29°C tous les 100 m de profondeur (Bouchareb-Haouchine, 2012). Avec la valeur moyenne de ce gradient, nous pouvons estimer que la profondeur des systèmes hydrothermaux du nord-ouest de l'Algérie varie de 847 à 1919 m. Les activités de ^{222}Rn les plus élevées n'ont pas été enregistrées dans les eaux thermales provenant des aquifères les plus profonds. Par exemple, l'activité des sources thermales Hammam Bouhdjar et Bouhnifia-Nakhla sont de 4,74 Bq/l (4475 Bq/m³) et 377,15 Bq/l (377155 Bq/m³) respectivement. Ainsi, les niveaux élevés de Radium ne sont pas associés aux aquifères les plus profonds.

Le présent résultat montre que l'augmentation des gradients géothermiques n'entraîne pas nécessairement une augmentation de la radioactivité du Radon.

Le Radon est associé à des processus géologiques, tectoniques et physiques, et il semble qu'il soit très mobile dans les systèmes hydrothermaux du nord-ouest de l'Algérie. Ces résultats confirment l'étroite relation entre les concentrations élevées de ^{222}Rn et les aquifères de zones à forte sismicité dans le nord-ouest de l'Algérie.

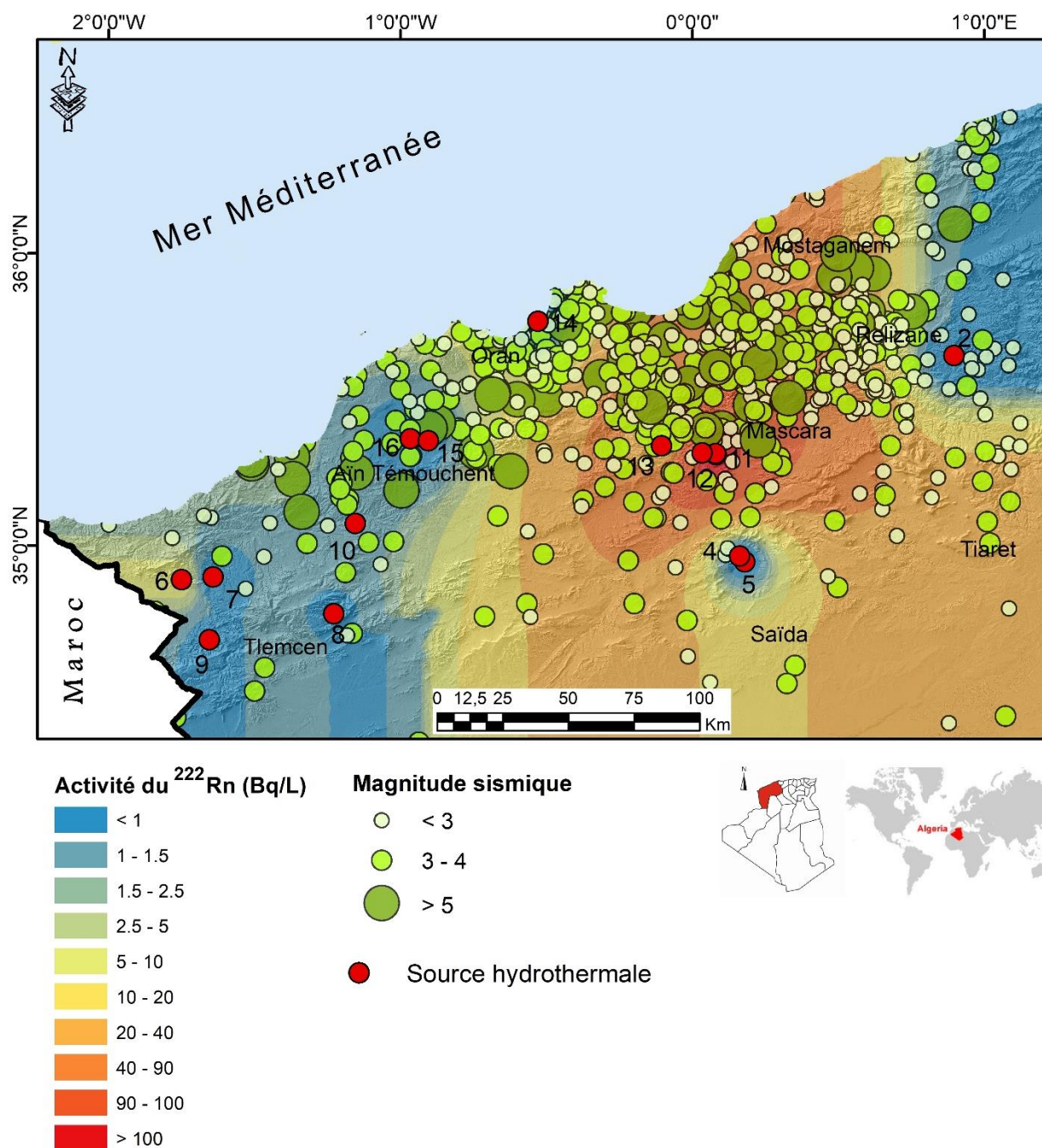


Fig. 71. Relation entre l'occurrence du Radon et la sismicité au Nord-ouest algérien

(1: Mkeberta; 2: Beni Yesaad; 3: Mentila; 4: Hammam Rabi; 5: Sidi Aissa; 6: Chiguer; 7: Boughrara; 8: Tahamamit; 9: Ain Hemmam; 10: Sidi Abdelly; 11: Bouhnifia Nekhla; 12: Bouhnifia N°3 Hamia; 13: El Hammat; 14: Ain Franin; 15: Hammam Bouhdjar; 16: Sidi Ayd)

VII. Conclusion

Dans ce chapitre, les principaux résultats de l'occurrence de la radioactivité du Radon et du Radium dans les systèmes hydrothermaux de la région d'étude ont été abordés et discutés.

Les eaux thermales de l'Ouest algérien ont montré des activités en radioactivité élevées. Ces niveaux élevés caractérisent surtout les eaux à faciès chlorurés. En comparant la radioactivité du Radium et du Radon dans les eaux thermales à travers le monde, les eaux étudiées se classent parmi les plus radioactives.

Les déséquilibres radioactifs, évalués par les rapports d'activité isotopique, ont été examinés en détail dans ce chapitre. Ils nous ont permis de comprendre l'origine du Radium ainsi que les processus géologiques et hydrogéologiques qui influencent la migration de ces isotopes dans les eaux. Les concentrations en Radon-222 (^{222}Rn) sont généralement plus élevées que celles du Radium-226 (^{226}Ra) dans les eaux thermales du Nord-ouest algérien. Ces deux isotopes auraient des comportements différents, liés aux processus se produisant dans la zone d'ascension des eaux jusqu'à leur émergence en surface. Le rapport entre ces deux radio-isotopes (^{222}Ra et ^{226}Ra) montre que les eaux thermales ont tendance à se mélanger avec les eaux froides près de la zone d'émergence lors de leur ascension à la surface.

Le rapport d'activité $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ a montré que, pour la plupart des aquifères hydrothermaux du nord-ouest de l'Algérie, ce sont les carbonates qui seraient une source importante de Radium. Cela s'explique par le recul alpha, qui est la principale source d'accumulation de ^{226}Ra dans une solution d'eau thermale. La relation entre ^{224}Ra et ^{228}Ra suggère que ces deux radioisotopes sont introduits dans l'eau par le biais du ^{232}Th .

D'autre part, les processus physico-hydrochimiques ont également joué un rôle dans la migration et la solubilité des radio-isotopes étudiés. En effet, les processus thermiques peuvent influencer la migration et la répartition des concentrations du Radium dans les eaux thermales. La présence de gradients géothermiques élevés a entraîné une augmentation de la température de l'eau et par conséquent une augmentation du taux de dissolution des minéraux radioactifs, dont les isotopes du Radium. La minéralisation et la salinité de l'eau sont des éléments clés qui affectent généralement le chimisme du Radium dans les aquifères. Cependant, les variations de salinité dans les aquifères étudiés et leur effet sur la sorption/désorption du Radium ne sont pas la cause dominante, ni la seule cause des variations de concentrations en ^{223}Ra , ^{224}Ra , ^{226}Ra et ^{228}Ra dans les eaux. La faible abondance des minéraux argileux et des oxydes de fer et de manganèse, qui fournissent des sites d'adsorption pour le Radium dans l'aquifère, pourrait également expliquer les variations observées du ^{226}Ra .

Enfin, la tectonique et la fracturation jouent également un rôle important dans la migration et la répartition de la radioactivité des eaux souterraines. Il est intéressant de noter que les niveaux élevés de ^{222}Rn sont localisés dans les zones de concentrations des activités sismiques dans la région étudiée. Il en résulte des concentrations en Radon plus élevées le long des lignes tectoniques, et son émanation est considérablement augmentée dans les eaux souterraines à travers les structures tectoniques.

Chapitre VI

*Impact des composés insolubles
de Sulfate sur la géochimie
du Radium dans les systèmes hydrothermaux*

I. Introduction

Le Radium est un métal alcalino-terreux et il présente des propriétés chimiques similaires à celles des autres métaux alcalino-terreux (métaux du groupe II). De plus, le Baryum, le Strontium, d'autres métaux alcalino-terreux et le plomb peuvent également être présents dans les eaux souterraines naturelles, à proximité d'un dépôt ou des sources nucléaires, ce qui affectera la façon dont le Radium pourrait migrer dans les eaux souterraines (Brown et al, 2019). Par conséquent, le Radium est facilement incorporé dans une solution solide avec des minéraux de Sulfate et de carbonate alcalino-terreux, et la co-précipitation avec ces phases peut éliminer Ra des eaux souterraines (Langmuir et Melchior, 1985 ; Langmuir et Riese, 1985 ; Beaucaire et al., 1987 ; Sturchio et al., 1993 ; Grundl et Cape, 2006 ; Grandia et al., 2008). Des études radio-hydro-chimiques indiquent que la précipitation de la barytine, sulfate de baryum de formule $BaSO_4$, a un effet significatif sur la concentration aqueuse de Ra, en raison du comportement chimique identique de Ra et de Ba. De ce fait, un examen détaillé des processus géochimiques sulfatés et de leur impact sur les activités des isotopes du Radium ($^{223}, ^{224}, ^{226}, ^{228}Ra$) est nécessaire pour une meilleure compréhension de l'apport du Radium dans les eaux thermales.

Be 4	Béryllium
Mg 12	Magnésium
Ca 20	Calcium
Sr 38	Strontium
Ba 56	Baryum
Ra 88	Radium

Dans le chapitre précédent, nous avons examiné les différents processus hydrochimiques qui peuvent influencer la concentration du Radium dans les eaux thermales. En complément de ces processus, il est également courant d'observer la co-précipitation entre le Radium et les composés sulfatés, qui constituent un facteur hydrogéochimique important dans la limitation de la mobilité du Radium dans les milieux aquatiques.

Dans ce chapitre, nous nous concentrerons sur l'impact des composés insolubles, tels que la barytine et la célestine, sur la mobilité des isotopes de Radium dans ces eaux. Nous examinerons en détail le processus de co-précipitation et son rôle dans la régulation de la concentration du Radium dans les eaux souterraines. Une bonne analyse de ces processus est fondamentale pour la compréhension de la radioactivité du Radium et son comportement géochimique dans les sites hydrothermaux de l'ouest algérien. Cette analyse détaillée permettra surtout de mieux comprendre la relation entre le Radium et les minéraux sulfatés, basée sur les réactions de co-précipitation du Radium dans les eaux étudiées par les systèmes de composés binaire Ba/Sr-SO₄ (la Barytine et la Célestine).

II. Les composés insolubles de sulfates

Les composés insolubles de sulfates sont des substances qui se forment lorsque les sulfates réagissent avec d'autres ions pour former des précipités insolubles dans l'eau. Les sulfates sont des composés chimiques qui contiennent le groupe SO_4^{2-} , et sont présents dans de nombreux minéraux et matériaux naturels tels que les roches, les sols, les eaux souterraines, les sédiments et les minerais.

Les composés insolubles de sulfates peuvent avoir des impacts environnementaux importants, car ils peuvent se déposer dans les sols et les eaux, obstruant les voies d'écoulement et perturbant les écosystèmes aquatiques.

La caractérisation et la compréhension de la formation de ces composés, ainsi que de leur impact sur la teneur en Radium dans les eaux thermales, sont donc importantes pour la gestion de l'environnement aquatique hydrothermal.

Le Radium co-précipite avec d'autres minéraux sulfatés, un processus bien connu pour réguler les niveaux de Radium dans les eaux souterraines (Martin et Akber, 1999 ; Langmuir et Melchior, 1985). Les solutions solides de groupe sulfaté peuvent avoir des contributions de quelques minéraux, qui sont la Baryte (BaSO_4), la Célestine (SrSO_4), l'Anglésite (PbSO_4). Ces deux derniers minéraux insolubles ont une structure géochimique similaire, et jouent un rôle dans la co-précipitation du Radium avec les sulfates dans les eaux souterraines (Hawthorne et al. 2000).

Des études théoriques (Zhu, 2004) les ont identifiés (la célestine (SrSO_4) et l'anglésite (PbSO_4)) comme les minéraux les plus susceptibles de jouer ce rôle. Il est possible que ces minéraux soient saturés dans la zone confinée de l'aquifère et qu'ils contrôlent les niveaux de Radium et sa mobilité de la même manière que la Barytine. L'anglésite est commune dans les zones d'altération des gisements de minerai de plomb (Grandia et al., 2008). Cependant, les informations sur les concentrations de Strontium et de Plomb sont nécessaires pour tester cette hypothèse. A partir des résultats d'analyses chimiques et des éléments traces, nous avons calculé les indices de saturation de ces composés sulfatés. Le tableau 10 présente les indices de saturation des eaux thermales étudiées par rapport à la Barytine, Célestite et l'Anglésite (Fig. 72). Ces résultats indiquent que les eaux thermales sont toutes sous-saturées par rapport à l'Anglésite, tandis que certains échantillons sont proches de l'équilibre à légèrement saturés par rapport à la Célestine et la Barytine. Ces résultats s'expliquent par les faibles concentrations en Pb dans les eaux.

Tableau. 10. Indices de saturations des minéraux sulfatés dans les eaux thermales de l'Ouest algérien.

ID	Source	Barytine (BaSO ₄)	Celestine (SrSO ₄)	Anglesite (PbSO ₄)
S1	Mkeberta	-0,03	0,0	-5,40
S2	Béni Yessaad	-0,01	-0,01	-5,74
S3	Mentila	-0,51	-0,5	-3,39
S4	Hammam Rabi	-0,09	-0,79	-4,59
S5	Sidi Aissa	-0,13	-0,45	-5,08
S6	Chiguer	-0,14	-1,51	-5,41
S7	Bouhrara	-0,80	-3,02	-7,00
S8	Tahamamit	-0,37	-2,80	-5,77
S9	Ain Hemmam	-1,45	-3,36	-6,45
S10	Sidi Abdelly	-0,97	-3,42	-6,36
S11	Bouhnifia Nekhla	0,20	-1,36	-5,18
S12	Bouhnifia N03 Hamia	-0,05	-1,63	-7,37
S13	El Hammat	-0,12	-1,39	-6,26
S14	Ain Franin	-0,09	-0,11	-5,57
S15	Hammam Bouhdjar	-0,02	-1,53	-7,32
S16	Sidi Ayd	0,10	-1,57	-6,78

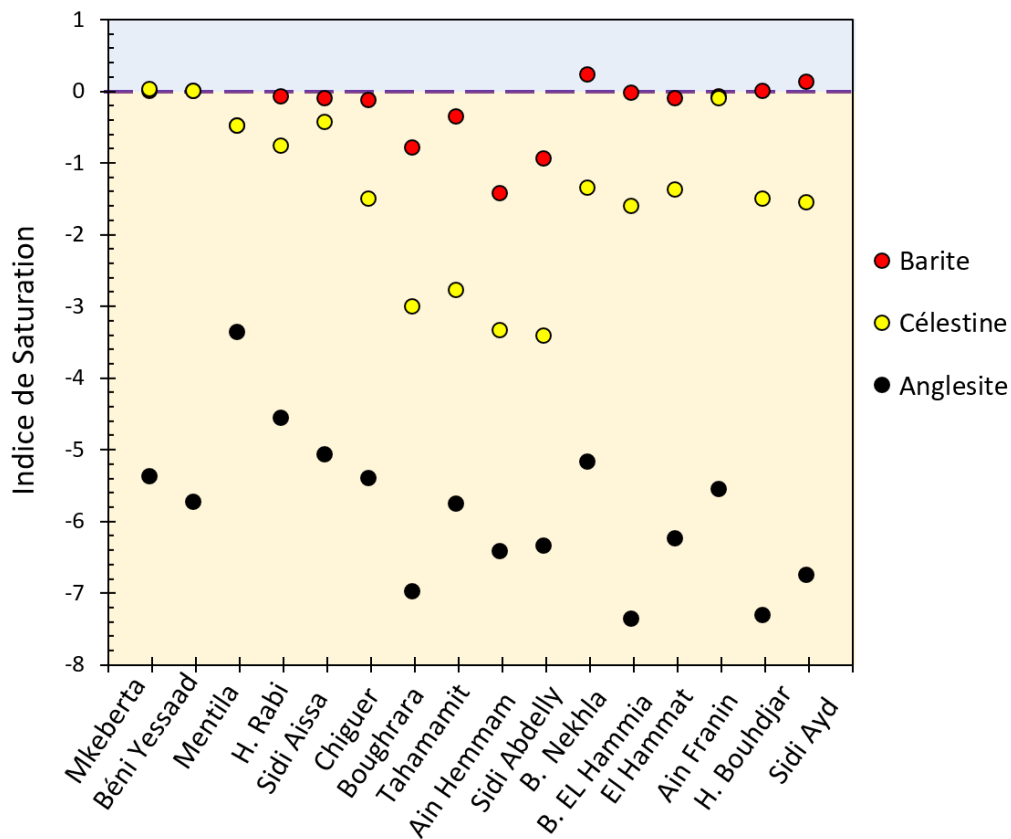


Fig. 72. Variation des indices de la saturation de BaSO₄, SrSO₄ et PbSO₄

III. L'effet du Sulfate et du Baryum sur la mobilité du Radium

Le Baryum peut être utilisé comme un substitut stable du Radium, du fait que ces deux éléments possèdent des comportements physico-chimiques similaires. En plus des processus de sorption, la co-précipitation du Radium avec le Sulfate de Baryum (barytine) est un autre mécanisme qui joue un rôle de contrôle du Radium dans l'eau. Le Radium co-précipite avec des composés insolubles, notamment des composés sulfatés, le Baryum et le Strontium, en barytine (BaSO_4) et en célestine (SrSO_4) (Grundl & Cape, 2006; Langmuir & Melchior, 1985; Sturchio et al., 1993; Zhu, 2004). Kiro et al., (2012) ont suggéré que la forte diminution du Radium ne peut pas être expliquée par l'adsorption, mais plutôt par l'élimination via la co-précipitation, probablement avec la barytine ou la célestine. Le RaSO_4 est une molécule neutre qui tend à être adsorbée sur toute les surface (Benes et al., 1986). La taille du rayon ionique de Ra (0.43nm) ne lui permet pas de se substituer aux autres éléments alcalino-terreux dans la plupart des minéraux, à l'exception du Baryum. Le Radium peut former aisément une solution solide avec le Baryum (rayon ionique 0.134) comme dans la barytine (BaSO_4) (Grundl and Cape, 2006). Cependant, cet élément peut possiblement co-précipiter avec d'autres minéraux comme la célestine (Langmuir and Melchior, 1985) et la calcite (Rihs et al., 2000).

La distance de transport du Radium dans l'eau souterraine dépend de la durée de sa demi-vie et du type d'eau. Les eaux thermales chlorurées sont le type d'eau qui a montré les activités de radionucléides les plus élevées. Les eaux riches en chlorure maximisent cette distance, par contre les eaux sulfatées et riche en sulfate (avec de faibles teneurs en chlorure) assurent virtuellement un transport du Radium négligeable (Gascoyne, 1992). La co-précipitation du Radium avec des phases minérales de sulfate et de carbonate alcalino-terreux élimine significativement le Radium des eaux souterraines (Kraemer et Reid, 1984 ; Grundl et Cape, 2006 ; Vengosh et al., 2009 ; Vinson et al., 2009 ; Sherif et al., 2018 ; Lagacé et al., 2018 ; Sherif et Sturchio, 2021). Ceci est attribué à la tendance de Ra^{2+} à se substituer aux cations alcalino-terreux divalents dans les réseaux minéraux, en raison des rayons ioniques et de la polarisabilité similaires de Ra^{2+} et de ces éléments (Goldschmidt, 1938). De ce fait, l'étude des deux éléments (Ra et Ba) est importante pour comprendre le comportement chimique du Radium dans les eaux souterraines. Dans les aquifères où la précipitation de la barytine est active, les concentrations de Ba^{2+} et de SO_4^{2-} peuvent être négativement corrélées (Underwood et al., 2009).

La relation entre les activités thermodynamiques du SO_4^{2-} et du Ba dans les eaux thermales est illustrée dans la figure 73 (Fig. 73a). Pour la majorité des échantillons, on remarque une nette diminution de la concentration de Ba avec l'augmentation de celle des SO_4^{2-} , à l'exception des

eaux avec des teneurs faibles en sulfate ($\text{SO}_4^{2-} < 56 \text{ mg/l}$). La tendance inverse observée entre les activités Ba et SO_4^{2-} ($R = -0,59$) implique la formation d'un précipité de barytine, ou du moins qu'un excès de SO_4^{2-} limite la concentration aqueuse de Ba (Gilkeson et al., 1983 ; Underwood et al., 2009 ; Szabo et al., 2012).

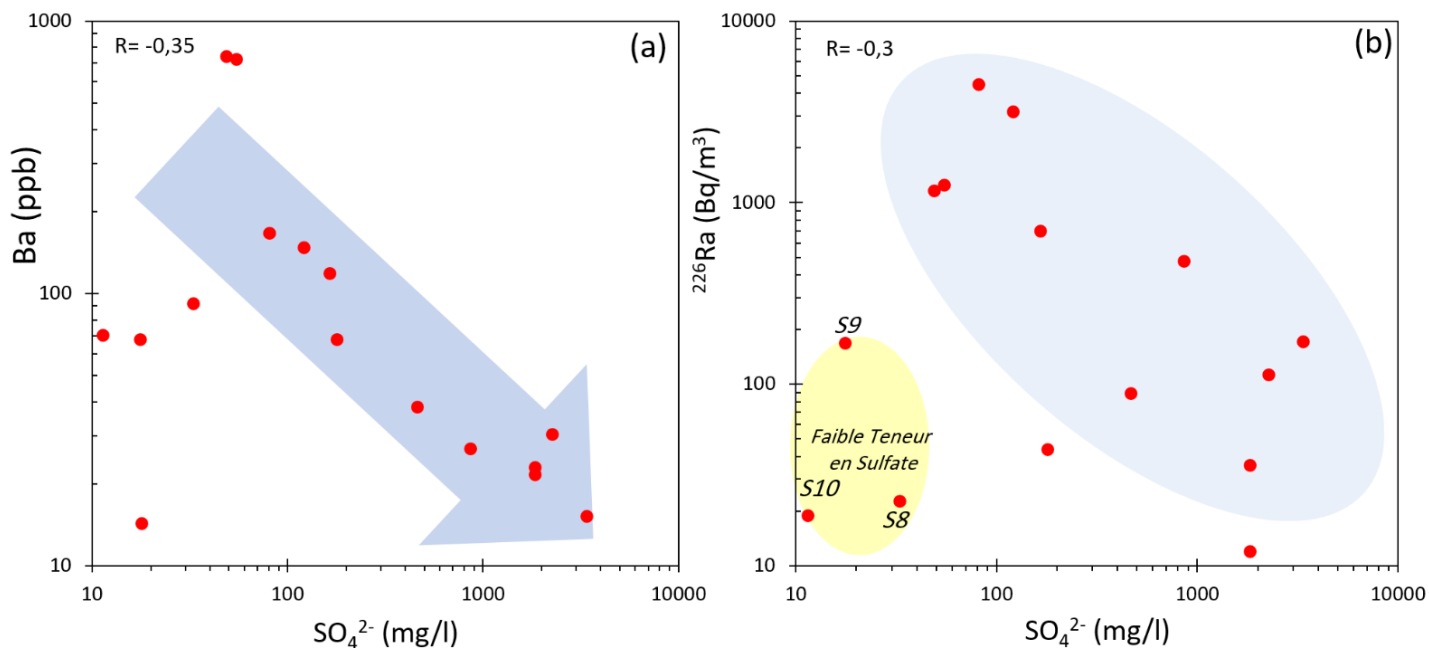


Fig. 73. Relation SO_4^{2-} vs Ba (a) et SO_4^{2-} vs ^{226}Ra (b)

Le coefficient de corrélations entre ^{226}Ra et SO_4^{2-} est similaire à celui entre Ba et SO_4^{2-} ($R=0,59$ et $0,55$), ce qui confirme que les sulfates réagissent chimiquement de la même manière qu'avec le Baryum (Fig. 73b). Cette tendance traduit fortement la possibilité de formation des minéraux insoluble entre les sulfates et le Radium dans les eaux thermales étudiées. Néanmoins, ces résultats révèlent également que la co-précipitation des minéraux contenant des éléments alcalino-terreux (comme la barytine) peut ne pas être un mécanisme de contrôle dominant de l'élimination du Ra, mais contribue certainement au processus d'élimination du Radium dans les eaux thermales.

III.1. Les isotopes du Radium versus le Baryum

Les relations entre les isotopes du Radium versus le Baryum sont présentées sur la Figure 74. La concentration de Ba est relativement faible dans les eaux souterraines étudiées, à l'exception de quelques échantillons. Ceci est dû à la précipitation de la barytine dans les aquifères hydrothermaux. Ra et Ba montrent une corrélation moyenne à forte, avec des coefficients de $R=0,3$, $R =0,71$, $R =0,45$ et $R =0,61$ respectivement pour le ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{223}Ra et ^{224}Ra .

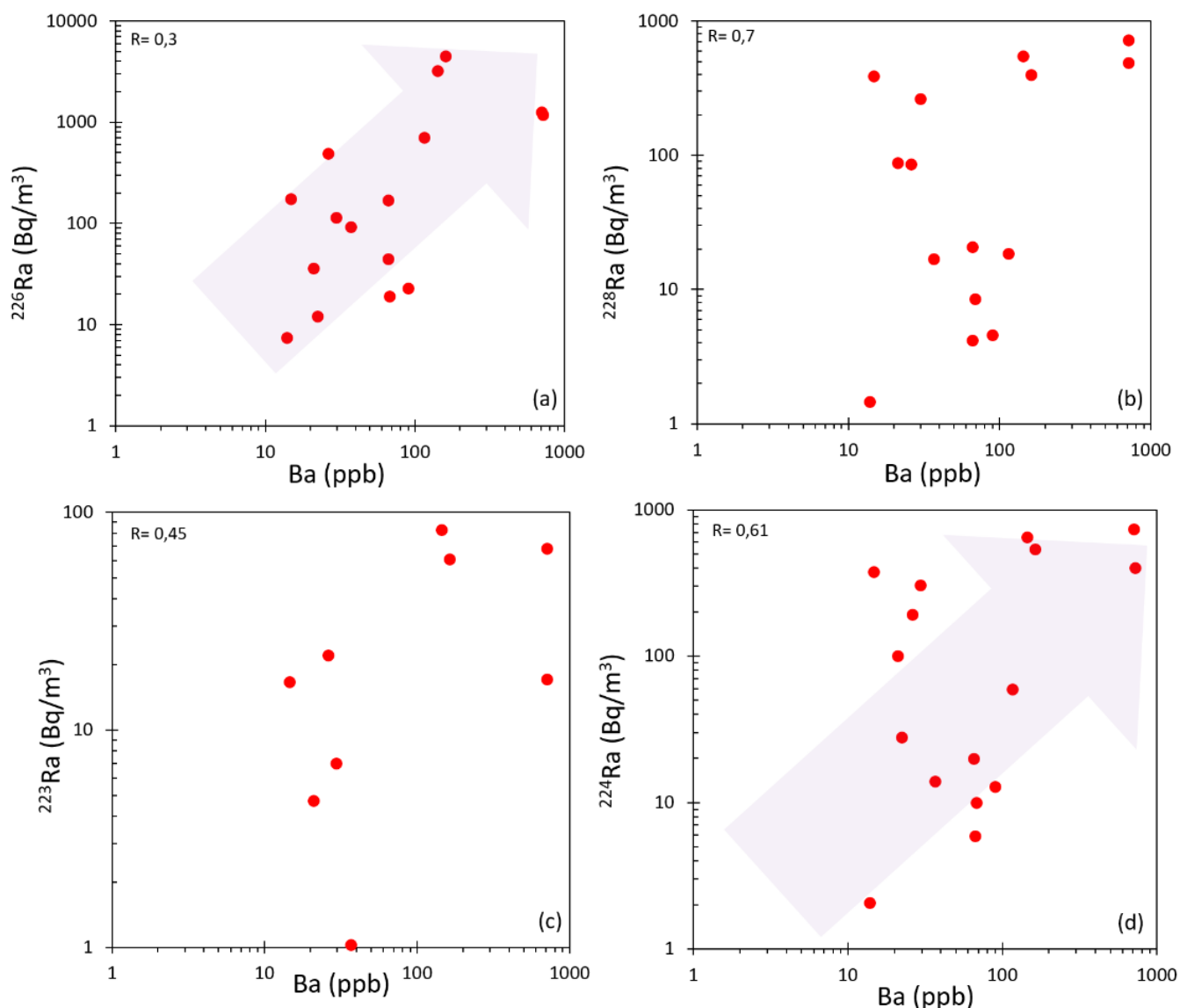


Fig. 74. Relation entre les isotopes du Radium et le Baryum

Cela signifie que la concentration en Radium augmente avec celle du Baryum, ce qui suggère que le Radium peut se lier de la même manière que le Baryum aux composés insolubles des sulfates. Cette similarité chimique aurait un impact significatif sur la mobilité et la biodisponibilité de cet élément radioactif. Les concentrations du Radium et du Baryum dans les eaux thermales étudiées nous ont bien confirmé cette relation.

IV. Impact des composés insolubles de sulfates sur la mobilité du Radium

IV.1. Relation : Isotopes du Radium - Barytine (BaSO₄)

Des études ont montré que la propension des minéraux carbonatés à former des solutions solides de Radium par co-précipitation est en général bien moindre que celle des minéraux sulfatés (Langmuir et Riese 1985 ; Sturchio et al., 2001). Un rapport $^{226}\text{Ra}/\text{Ba}$ constant dans les eaux

souterraines saturées de barytine présentant de grandes variations dans les concentrations de Ba et de SO_4^{2-} a été interprété comme une indication du contrôle de la concentration de Ra par la saturation en barytine dans un aquifère de grès (Grundl et Cape, 2006). Cette condition implique également qu'il existe un échange actif de Ra entre la barytine et les eaux souterraines sur une échelle de temps courte par rapport à la constante de désintégration du ^{226}Ra (Grundl et Cape, 2006). La barytine est proche de la saturation dans tous les échantillons, à l'exception de certains échantillons de la région de Tlemcen (S6, S7, S8, S9 et S10) qui présentent une très faible minéralisation notamment en Sulfates (I.S < 0) (Fig. 75). Lorsque les concentrations en SO_4^{2-} augmentent, les eaux souterraines sont saturées ou proches de la saturation par rapport à la barytine. Ainsi, la saturation en barytine semble exercer moins de contrôle sur Ra dans ce système.

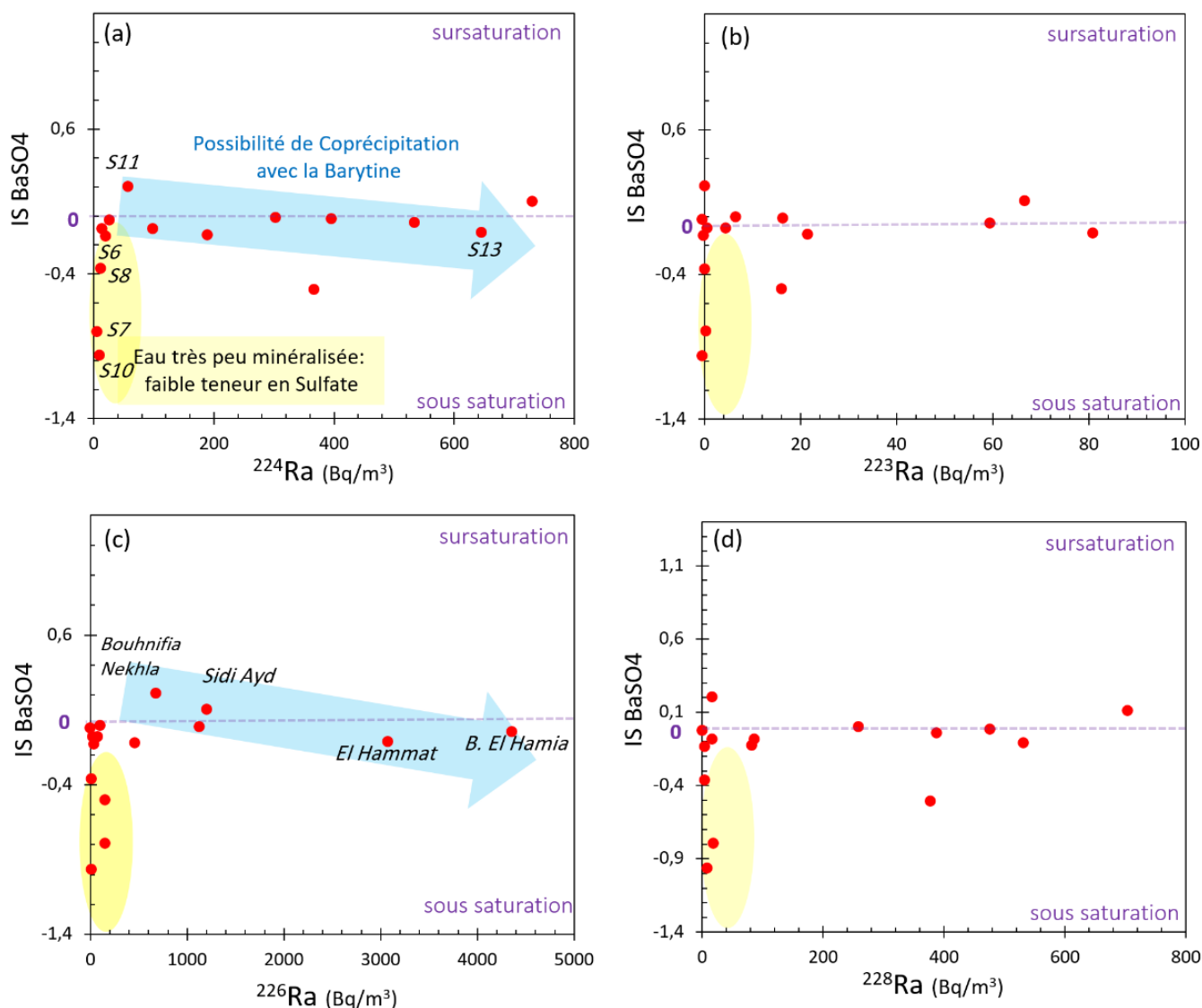


Fig. 75. Les isotopes du Radium vs les indices de saturation BaSO₄

Les échantillons avec de faibles concentrations en sulfate (S6, S7, S8, S9 et S10) sont aussi caractérisés par de faibles températures. La température joue donc probablement un rôle dans le processus de co-précipitation du Radium. La co-précipitation avec la barytine pour contrôler les activités du Radium est un phénomène rarement observé dans les aquifères à basse température (Grundl et Cape, 2006). Les échantillons cités ci-dessus ne co-précipitent pas avec la barytine, en raison de leur faible température et leur faible teneur en sulfate (Fig. 76). Leur pH est légèrement supérieur à 7. Dans ce contexte, il convient de rappeler que le degré de co-précipitation du Radium avec le BaSO_4 est plus élevé dans des solutions acides que dans des solutions alcalines (Kudryavskii and Rakhimova, 2007).

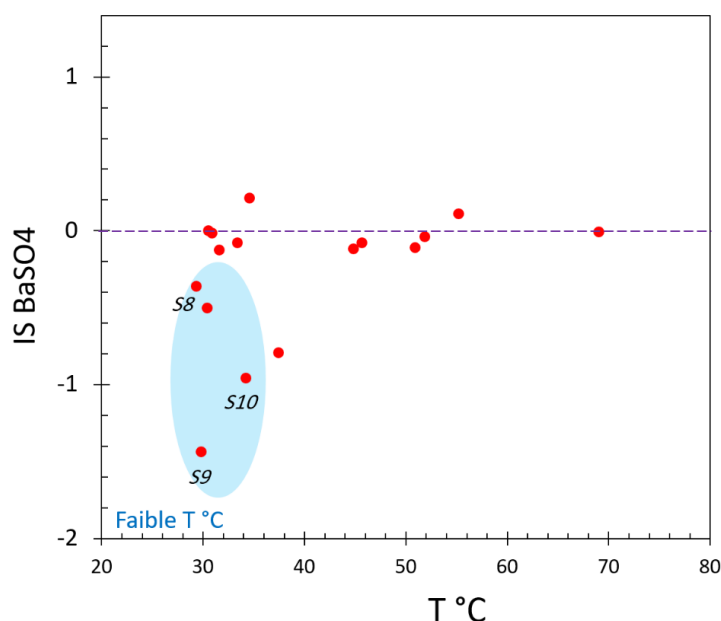


Fig. 76. Température des eaux thermales vs l'indice de saturation de la Barytine (BaSO_4)

IV.2. Relation : Isotopes du Radium - Célestine (SrSO_4)

Les indices de saturation de la phase minérale Célestine varient de -3,40 à 0. La représentation de l'indice de saturation du SrSO_4 versus les quatre isotopes du Radium (Fig. 77a, b, c et d) met en exergue l'importance de ce composé insoluble dans le contrôle du Radium : les eaux proches de la saturation en SrSO_4 ont des concentrations faibles en Radium. En revanche, les eaux sous-saturées en SrSO_4 ont des concentrations plus élevées en Radium. Ce résultat montre clairement que l'excès de SO_4^{2-} limite la concentration aqueuse du Radium (Gilkeson et al., 1983 ; Underwood et al., 2009 ; Szabo et al., 2012, Sherif et al., 2018).

Les eaux qui ont des concentrations faibles en Sulfate ne sont pas affectées par les composés insolubles des sulfates. Lorsque les concentrations de SO_4^{2-} augmentent, les eaux sont proches de l'équilibre ou saturées en BaSO_4 et SrSO_4 . Cette distribution du Radium par rapport à la

saturation en célestine (et en barytine) indique que la co-précipitation avec la célestine n'est pas réellement efficace dans ce cas, pour limiter les concentrations de Ra pour les faibles concentrations de SO_4^{2-} , mais cela affecte partiellement la mobilité du Radium. Par conséquent, d'autres facteurs contrôlent probablement les activités élevées de Ra dans les échantillons où l'eau est presque saturée ou sursaturée vis-à-vis des composés sulfatés.

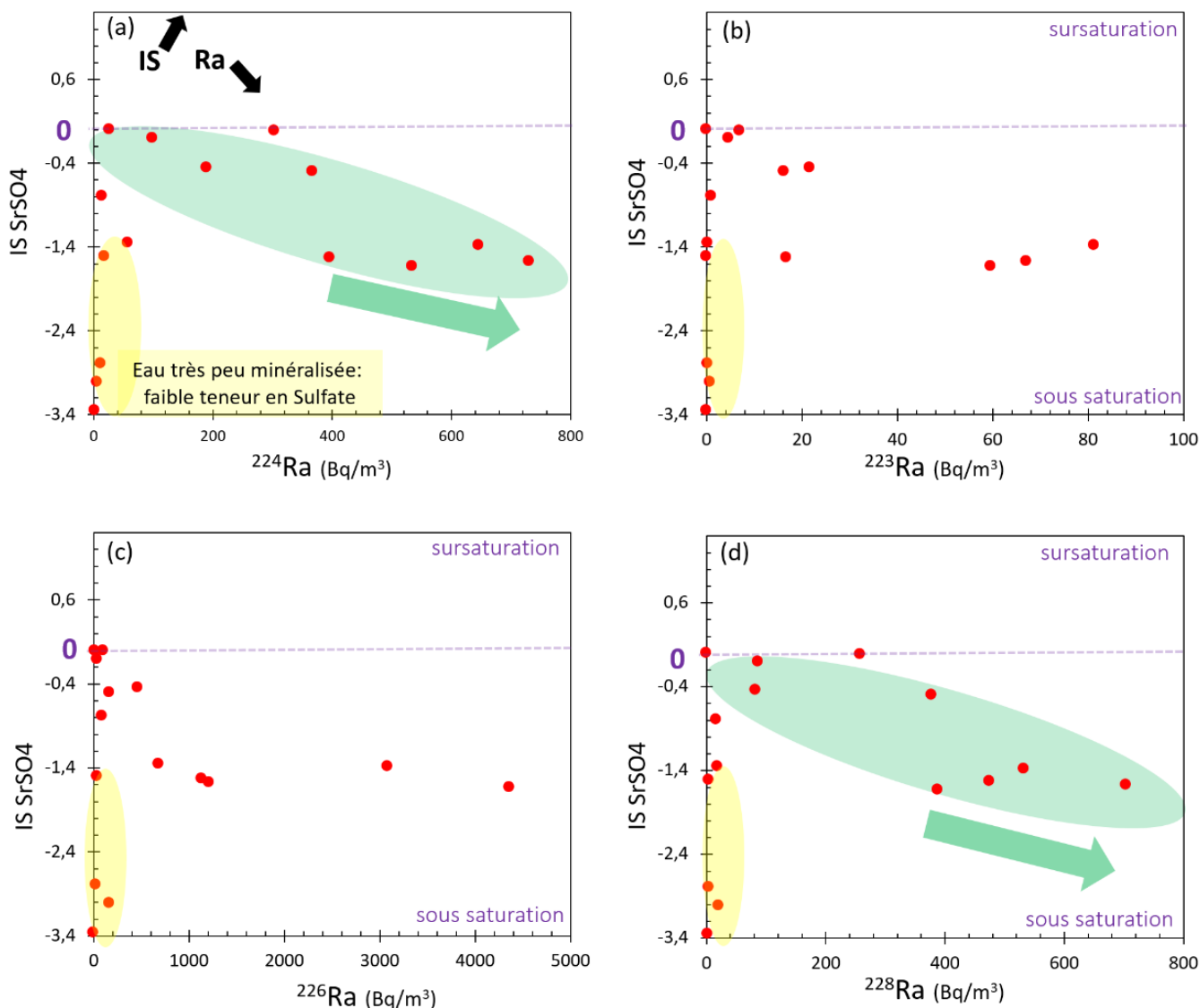


Fig. 77. Isotopes du Radium vs I.S. SrSO_4

IV.3. Relation : isotopes du Radium - Anglésite (PbSO_4)

Tous les échantillons sont sous-saturés par rapport à l'anglésite, ce minéral étant peu soluble dans l'eau. Cependant, quand les valeurs de l'indice de sous-saturation par rapport à ce minéral augmentent, l'augmentation de l'activité du Radium ne peut pas être expliquée par la co-

précipitation avec l'anglésite (Fig. 78). D'autres mécanismes interviennent probablement pour expliquer cette augmentation, comme cela a été mentionné dans le chapitre précédent.

Pour résumer, dans les systèmes hydrothermaux étudiés, le Radium présente une propension significativement plus élevée à former des co-précipités avec des composés sulfatés dans des solutions à faciès chloruré sodique et sulfaté calcique par rapport aux eaux à faciès bicarbonaté (Kudryavskii and Rakhimova, 2007).

Il est donc important de réaliser des études supplémentaires pour valider cette interprétation et pour mieux comprendre les processus impliqués dans la co-précipitation du Radium avec l'Anglésite.

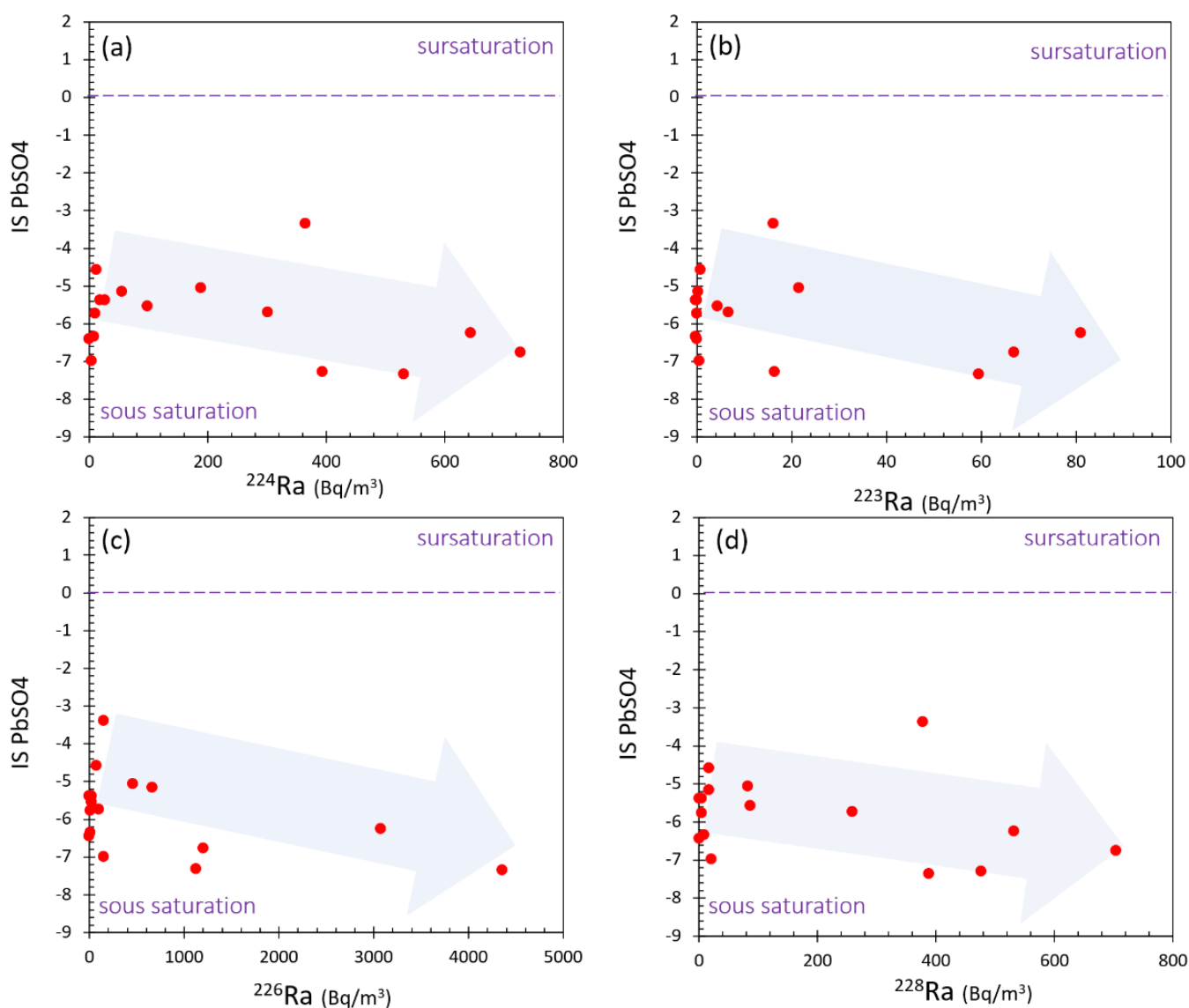


Fig. 78. Les isotopes du Radium vs les indices de saturation PbSO₄

Enfin, comme nous l'avons montré dans ce chapitre, les isotopes du Radium ($^{223}, ^{224}, ^{226}, ^{228}\text{Ra}$) et Ba peuvent être bien corrélés. Une bonne corrélation entre ces deux éléments implique soit une origine commune, soit des mécanismes d'absorption-désorption ou une majeure précipitation commune, ou les trois (Vinson et al., 2012). Cependant, la faible corrélation des rapports Ra/Ba tend à démontrer, dans le cas présent, qu'il existe des processus physico-chimiques qui différencient le Radium du Baryum. Les processus réactionnels avec la matrice des deux espèces ne concordent pas, et/ou la dissolution des matrices n'est pas l'unique mécanisme contribuant à la présence du Radium dans les eaux. Le Baryum est un élément stable, il ne peut pas représenter le comportement du Radium. La forte différence de comportement entre le Ra et Ba ne peut qu'être liée aux phénomènes de recul et de décroissance radioactive du Th adsorbé lesquels contribuent à contrôler majoritairement les activités en Radium dans les eaux étudiées. Cependant, lorsque les concentrations de SO_4^{2-} sont élevées, des espèces mineures de RaSO_4 peuvent également apparaître (Kitamura et Yoshida, 2021 ; Langmuir et Riese, 1985) et c'est le cas des eaux thermales du Nord-Ouest algérien.

La quantité de ^{226}Ra libérée de la phase solide par les mécanismes de recul alpha et retenue en solution comprend une fraction progressivement plus importante de ^{226}Ra total par rapport à la fraction séquestrée par adsorption ou incorporation dans des précipités de barytine en formation lente à mesure que l'eau souterraine devient de plus en plus minéralisée. Des études récentes (Vinson et al., 2009 ; Vengosh et al., 2009 ; Coyte et al., 2018) ont montrés que le Radium se présente principalement (> 90 %) sous forme de Ra^{2+} , moins de 10 % du Radium se présentant sous la forme de RaSO_4 (Fig. 79). Même dans des eaux souterraines plus salines avec des concentrations de SO_4^{2-} plus élevées, la distribution des espèces de RaSO_4 ne ferait qu'augmenter jusqu'à environ 15% du Radium aqueux total (Coyte et al., 2018). Ceci confirme nos résultats, puisque les teneurs en sulfate dans les eaux souterraines n'ont pas l'efficacité absolue pour limiter les concentrations de Radium, par conséquent, le Radium peut rester mobile et à forte activité même en présence de fortes teneurs en sulfate.

Finalement, les activités Ra et Rn élevées dans les échantillons de plusieurs sources des systèmes hydrothermaux du Nord-Ouest de l'Algérie, sont probablement attribuées à des abondances relativement élevées d'U dans les minéraux de l'aquifère. Cela produit constamment ces radionucléides par recul alpha. Par ailleurs, les activités et la chimie des échantillons indiquent également que les matériaux aquifères contiennent une abondance minimale d'argiles. Dans l'ensemble, cela suggère que le Radium produit par les processus de recul alpha n'est pas équilibré par l'adsorption sur les surfaces argileuses.

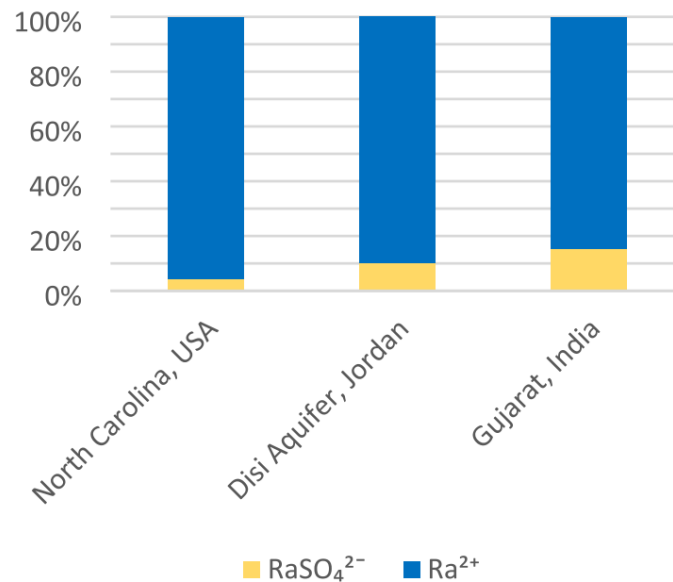


Fig. 79. Répartition des espèces de Radium dans les eaux souterraines de la région du Piémont en Caroline du Nord (Vinson et al., 2009), de l'aquifère de grès de Disi (Saq) dans le sud de la Jordanie (Vengosh et al., 2009) et du Gujarat dans le nord-ouest de l'Inde (Coyte et al., 2018).

V. Risque sanitaire lié à l'exploitation des eaux riches en radioactivité du Ra et Rn

Le Radium est connu par des propriétés chimiques similaires à celles du calcium et sa consommation à long terme dans l'eau a été associée au cancer des os. Plusieurs études épidémiologiques aux États-Unis (Cohn et al., 2003), au Canada (Finkelstein, 1994 ; Finkelstein et Kreiger, 1996) et en Thaïlande (Hirunwattanakul et al., 2006) ont montré une augmentation de la prévalence du cancer chez les résidents qui consomment du Radium au-delà des lignes directrices sur les risques pour la santé (National Research Council, 2006). Un Ra élevé dans l'eau potable a été associé à une prévalence relativement élevée du cancer des os, en particulier chez les enfants (Finkelstein, 1994 ; Finkelstein et Kreiger, 1996) et les mâles vieillissants (Cohn et al., 2003).

Les activités du Radium et du Radon dans les eaux souterraines devraient être sérieusement prises en considération. Des activités élevées de ces radionucléides, principalement Ra, dépassant le niveau maximal de contaminant (MCL) dans l'eau potable, ont été signalés dans les eaux souterraines de plusieurs aquifères à travers le monde (Dabbagh et al., 2006; Vengosh et al., 2009; Yarar et al., 2015; Sherif et al., 2018 ; Stackelberg et al., 2018 ; Sherif et Sturchio, 2021). Les eaux thermales du nord-ouest algérien sont largement utilisées et exploitées par les stations thermales. Ces eaux sont également parfois utilisées pour la consommation (boisson) en raison du manque de ressources en eau et d'eau froide, ainsi que de la conviction des habitants locaux que ces eaux jouent un rôle curatif pour la santé humaine, en éliminant par exemple les sédiments des reins (par exemple Chiguer, Bouhnifia -Nekhla, Bouhnifia El-Hamia)

Les résultats de cette étude montrent des concentrations d'activité élevées des isotopes Ra et Rn. L'exposition continue à ces nucléides produit des effets à long terme sur la santé humaine car ces radionucléides sont classés comme cancérigènes (IARC, 2013). Le Radium pénètre dans le corps humain et s'accumule dans les os et les dents et devient une source d'irradiation corporelle, affaiblissant et cassant les os (Fajardo, 2001; AIEA, 2010). D'autre part, le Radon est également cancérigène et est le deuxième contributeur principal au cancer du poumon après le tabac (WHO, 2006). En raison des risques potentiels du Radium pour la santé, sa concentration dans les eaux de surface et souterraines est surveillée en permanence dans le cadre des programmes de qualité de l'eau des agences environnementales internationales. Certaines agences internationales ont adopté une concentration admissible et des niveaux maximaux de contamination de Ra et Rn, comme l'Organisation Mondiale de la Santé (WHO) et l'Agence de Protection de l'Environnement des États-Unis (US EPA). Selon les directives de l'OMS (WHO, 2011) pour la qualité de l'eau potable, la concentration ne doit pas dépasser 1 Bq/l, 0,1 Bq/l et 100 Bq/l pour le ^{226}Ra , le ^{228}Ra et le ^{222}Rn respectivement. L'US EPA (2009) a établi un niveau maximal de contaminant (MCL) de 5,0 pCi/L (0,185 Bq/l) pour le Ra combiné (^{226}Ra et ^{228}Ra), et de 11,1 Bq/l pour le ^{222}Rn . Environ 50% des sources ont montré des activités Ra combinées supérieures aux valeurs autorisées établies par l'OMS et l'EPA (Fig. 80). Certaines sources montrent des activités Rn supérieures aux valeurs indicatives (11,1 Bq/L).

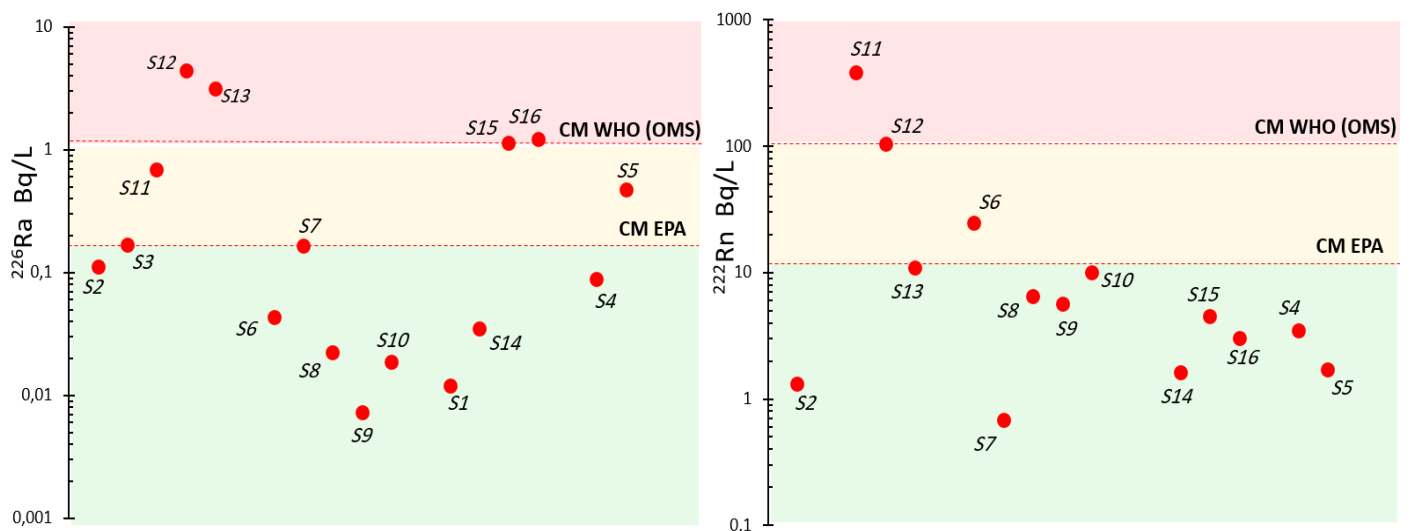


Fig. 80. Concentration maximale de ^{226}Ra et ^{222}Rn des eaux thermales

Même si elles ne représentent pas actuellement une grande proportion de l'approvisionnement en eau potable, il n'est pas exclu que ces eaux soient largement exploitées dans le futur pour répondre à la demande croissante en eau douce dans le pays. De plus, certaines de ces sources

sont actuellement utilisées à des fins médicales dans les spas et stations thermales conventionnées.

Une surveillance de la radioactivité naturelle de cette importante ressource en eau est donc strictement recommandée, surtout dans les zones où les concentrations en ces radionucléides dépassent les limites autorisées. Cette évaluation initiale des risques pour la santé humaine a également souligné l'importance de calculer avec précision la dose efficace annuelle de radioactivité pour évaluer les risques associés aux eaux thermales du Nord-Ouest de l'Algérie.

VI. Conclusion

La co-précipitation entre le Radium et les composés sulfatés est un processus hydrogéochimique commun dans le contrôle de la mobilité du Radium dans les milieux aquatiques. L'investigation des relations entre les éléments insolubles des sulfates (BaSO_4 , SrSO_4 et PbSO_4) a permis une meilleure compréhension de la géochimie de l'eau souterraine

En effet, les résultats de l'étude montrent que la coprécipitation avec les composés insolubles de sulfate, tels que la Barytine et la Célestine, joue un rôle dans la limitation de la migration des isotopes du Radium dans les systèmes hydrothermaux étudiés. Les aquifères hydrothermaux peuvent être saturés par rapport aux minéraux sulfatés, tels que SrSO_4 et PbSO_4 , et pourraient contrôler les niveaux de Radium de manière similaire au contrôle exercé par la barytine (BaSO_4). Néanmoins, ce processus n'est pas le facteur dominant pour l'ensemble des échantillons étudiés. Il n'affecterait pas les eaux à faible teneur en sulfates. Nous concluons de ce fait que la présence de sulfate dans l'eau influence significativement l'activité des radionucléides de Radium. Par conséquent, le Radium est largement mobile dans les eaux thermales de l'Ouest algérien.

Par ailleurs, il est primordial de constater que la plupart des eaux thermales étudiées ont des concentrations de Radium supérieures aux limites recommandées par l'OMS et l'EPA, en termes d'activité radioactive. Ces résultats soulignent l'importance de surveiller régulièrement aussi bien les concentrations de Radium que du Radon dans les sources d'eau étudiées, pour protéger la santé publique contre les effets potentiellement dangereux des rayonnements ionisants. En d'autres termes, il est essentiel de mesurer régulièrement la présence de ces substances radioactives pour garantir la sécurité des personnes qui utilisent ces eaux thermales.

Synthèse et Conclusion Générale

Conclusion générale, synthèse et modèle schématique du comportement des radionucléides dans les systèmes hydrothermaux du NW Algérien

Ce travail est une première investigation des processus radio-hydrochimiques des eaux hydrothermales de l'Ouest Algérien, basée sur l'étude des concentrations des isotopes du Radium à longue et courte demi-vie (^{223}Ra , ^{224}Ra , ^{226}Ra et ^{228}Ra) et du Radon (^{222}Rn) dans ces eaux.

Parallèlement à une synthèse géologique, hydrogéologique et une analyse hydrochimique profonde, ce travail a permis une meilleure compréhension des nombreux processus, essentiellement géochimiques et isotopiques qui régissent la composition physico-chimique des eaux souterraines de la région, ainsi que les risques associés à l'exposition à ces isotopes radioactifs.

Cette étude est la première du genre en Algérie à se concentrer sur des isotopes radioactifs spécifiques, ce qui rend sa contribution à la littérature scientifique internationale d'autant plus significative. Les résultats de cette recherche pourraient aider à informer la politique publique et les décisions réglementaires en matière de gestion de l'eau dans la région, ainsi qu'à éclairer la communauté scientifique sur les processus hydro(géo)logiques et géochimiques qui conditionnent les caractéristiques régionales des eaux hydrothermales de l'Ouest Algérien.

Cette étude est basée sur l'utilisation des traceurs radioactifs naturels (le Radium et le Radon), dans le but d'expliquer leur occurrence, et d'identifier les mécanismes géologiques, physiques et hydrogéochimiques qui contrôlent la présence de ces radionucléides dans ces systèmes hydrothermaux.

Dans un premier temps, nous avons mis en exergue la nature géologique, régionale et locale de la région d'étude. Par la suite, une étude entre la relation des manifestations des ressources géothermales et la tectonique régionale a été évaluée selon la littérature et au moyen d'une cartographie récente (SIG, ArcGis, Geomatica et RockWorks), soulignant la structure cassante de la région, qui joue un rôle primordial dans le drainage des eaux souterraines jusqu'à leurs points d'émergence à la surface.

Une étude hydrochimique beaucoup plus exhaustive, basée sur des résultats de mesures et d'analyses sur le terrain et au laboratoire des eaux thermales a été menée par la suite. Les résultats obtenus ont mis en évidence une grande hétérogénéité dans la composition chimique des eaux étudiées. Les températures de l'eau varient de 29,4 à 69,1°C, le pH est globalement légèrement acide à proche de la neutralité, tandis que la minéralisation des eaux échantillonnées varie considérablement d'une source à l'autre (entre 495,44 et 42547,11 mg/L). Trois principaux faciès chimiques ont été identifiés : Eau Sulfatée, Eau Bicarbonatée et Eau Chlorurée, ce dernier étant le faciès d'eau prédominant, représentant 50% des échantillons étudiés. Les résultats ont également

montré que les aquifères hydrothermaux sont principalement constitués de roches carbonatées, et que la composition chimique des eaux souterraines est également largement influencée par la dissolution des évaporites.

Il est à noter que la grande hétérogénéité des eaux thermales du Nord-Ouest algérien est principalement due à la diversité et la nature des terrains géologiques ainsi qu'aux paramètres structuraux de cette région du pays. Cette caractéristique a été mise en évidence par les résultats de l'étude hydrochimique, qui ont montré des différences significatives dans la composition chimique des eaux étudiées en fonction de leur localisation géographique et de leur environnement géologique.

La méthode d'échantillonnage et de prélèvement, qui est à la fois précise et standardisée, a été utilisée pour obtenir des échantillons de qualité, en vue de l'analyse des isotopes du Radium et du Radon dans les eaux souterraines de l'Ouest algérien. Grâce à la mise au point d'un protocole d'échantillonnage adapté, nous avons pu surmonter les obstacles méthodologiques liés à la mesure de la faible radioactivité des quatre radio-isotopes du Radium et du Radon présents dans les eaux hydrothermales étudiées. Pour des résultats plus précis et fiables, la méthode de mesure d'isotopes par RaDeCC (pour le Radium) et Rad7 (pour le Radon) a été adoptée.

Cette étude a révélé que les eaux hydrothermales provenant de grandes profondeurs peuvent présenter des concentrations élevées en éléments radioactifs issus des trois chaînes naturelles de désintégration, à savoir le Radium et le Radon. Ces résultats ont été valorisés par la publication d'un article dans la revue *Chemosphere* en 2023.

L'étude a révélé une variation significative des concentrations en éléments radioactifs dissous. En effet, les activités du Radon et du Radium, mesurées dans cette étude, sont plus élevées que celles rapportées dans de nombreuses autres études sur les eaux thermales dans le monde.

Les concentrations en ^{222}Rn des eaux étudiées sont nettement supérieures à celles en ^{226}Ra .

L'étude des déséquilibres radioactifs par les rapports d'activités isotopiques (c'est-à-dire $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$, $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$, $^{223}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ et $^{224}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$) montrent que certains processus, notamment géologiques et hydrochimiques, influencent clairement la radioactivité et la mobilité du Radium.

Le rapport d'activité isotopique $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$ suggère une occurrence potentielle de mélange entre les eaux thermales et les eaux peu profondes dans la zone étudiée, entraînant l'immobilisation possible du Radium par des processus de précipitation chimique dans la zone de mélange entre l'eau profonde et l'eau peu profonde.

Les résultats de cette étude révèlent que les eaux thermales d'Ain Franin, Béni Yessaad et Mentila présentent des ratios d'activités $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ supérieurs à la moyenne. Ces ratios élevés suggèrent que la source locale de ces eaux thermales, c'est-à-dire la roche réservoir, présente soit un rapport

Th/U plus élevé, soit un taux de décroissance différentiel des nucléides parents (c'est-à-dire ^{232}Th et ^{230}Th) dans les solides de l'aquifère.

Comme nous l'avons déjà souligné, la nature géologique des aquifères (lithologie) est un facteur déterminant de la présence d'isotopes de Radium dans les eaux souterraines, le rapport $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ est en effet un marqueur fiable de l'origine de ces eaux. Un rapport $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ inférieur à l'unité indique une prédominance de matériaux carbonatés dans la roche aquifère. Cette faible valeur peut également être influencée par le coefficient de désorption du Radium dans l'eau et l'augmentation du taux d'interaction eau-roche, due à la température élevée de l'eau.

La plupart des échantillons analysés présentent un rapport d'activité $^{223}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ faible, ce qui est en accord avec la faible abondance naturelle de l'isotope ^{235}U par rapport à ^{238}U dans les roches de l'aquifère. Il est possible que cette faible valeur du rapport d'activité $^{223}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ soit due à une dissolution importante des minéraux qui contiennent du Ra et/ou à une désorption du Ra des minéraux argileux et des oxydes.

Le processus de recul dans les aquifères étudiés est significatif car la concentration d'activité du ^{224}Ra dans ces eaux est légèrement supérieure à celle du ^{228}Ra . La concentration excessive de ^{224}Ra suggère une production proche de la surface à partir de ^{228}Th (cas des sources de : Bouhnifia nekhla, Mekeberta, Sidi Aissa et Chiguer).

Le mécanisme d'adsorption/désorption n'est pas un contrôle dominant de l'activité du Radium dans ces eaux, alors que les processus thermiques influencent probablement la migration et la distribution des concentrations d'activité Ra dans les aquifères étudiés. Les indices de saturation de la Barytine et la Célestine montrent que l'excès en SO_4^{2-} peut limiter la concentration aqueuse du Baryum, ce qui indique que les activités du Radium ne sont pas majoritairement contrôlées par la co-précipitation avec les sulfates de baryum dans toutes les eaux de sources étudiées.

La présence d'activités Ra et Rn élevées dans plusieurs sources des systèmes hydrothermaux du Nord-Ouest de l'Algérie est principalement attribuée au processus de recul et de désintégration alpha en raison de la forte abondance d'U dans les matériaux de l'aquifère.

Le processus de recul dans les aquifères hydrothermaux fait référence à la migration des radionucléides du Radium et du Radon et leurs isotopes, depuis les roches environnantes vers l'eau souterraine. Ce processus se produit en raison de la désintégration radioactive des isotopes de l'Uranium et du Thorium dans les roches et sols environnants de l'aquifère.

Ce processus de recul est influencé par de nombreux facteurs, tels que la composition géologique de l'aquifère, les propriétés physico-hydrochimiques de l'eau thermale, la concentration en radionucléides dans les roches environnantes ainsi que le contexte hydrogéologique local. De plus,

le Radium produit par le processus de recul n'est pas équilibré par l'adsorption sur les matériaux de l'aquifère.

La majorité des eaux hydrothermales étudiées, environ 50% d'échantillons présentent des activités Ra dépassant les limites autorisées par l'OMS et l'EPA. Ces résultats indiquent que la surveillance des concentrations d'activité Ra et Rn dans ces sources est plus que recommandée pour protéger la santé publique des rayonnements ionisés.

Cette étude a permis de dresser une synthèse générale sur les radio-isotopes et d'améliorer notre compréhension de leur comportement au sein des systèmes hydrothermaux. Les principaux mécanismes géologiques et chimiques qui affectent le comportement du Radium et du Radon ont été synthétisés par l'organigramme de la [figure 81](#).

Un modèle conceptuel a également été établi afin de résumer les considérations du chapitre 5. Le modèle conceptuel, présenté dans la [figure 82](#), permet de synthétiser le contexte hydrogéologique, l'évolution hydrochimique et la mobilité des isotopes radioactifs dans les réservoirs hydrothermaux jusqu'à la surface d'émergence.

Finalement, au cours du mouvement de l'eau souterraine à travers l'aquifère, le Radon et le Radium se désintègrent en d'autres produits de désintégration tels que le plomb, le polonium et le bismuth. Ces produits de désintégration se déposent sur les surfaces des grains de sédiments et des parois de l'aquifère, entraînant une accumulation de radioactivité dans la zone de saturation. Des investigations futures sont nécessaires pour déterminer la source de la radioactivité élevée dans certaines sources et d'approfondir les études sur le comportement hydrogéochimique des éléments radioactifs tels que les éléments fils du Ra et Rn. Il est également recommandé de calculer la dose de radiation liée à l'exposition au Radon, en particulier pour les eaux thermales utilisées à des fins thérapeutiques.

Influence sur les activités et la mobilité du Ra et Rn isotopes dans les systèmes hydrothermaux du nord ouest algérien

+ Influence positive , - Influence négative , 0 aucune influence

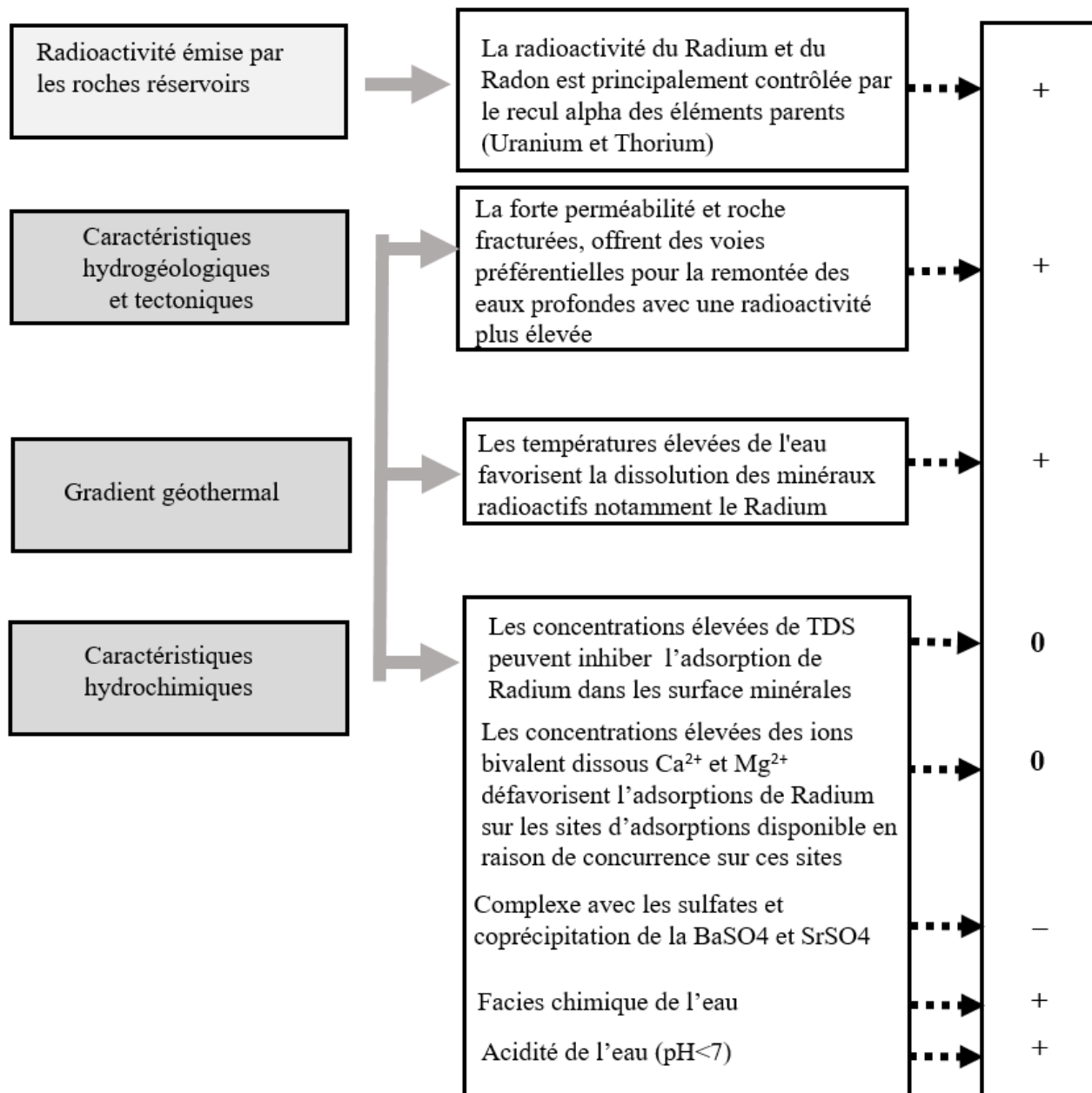
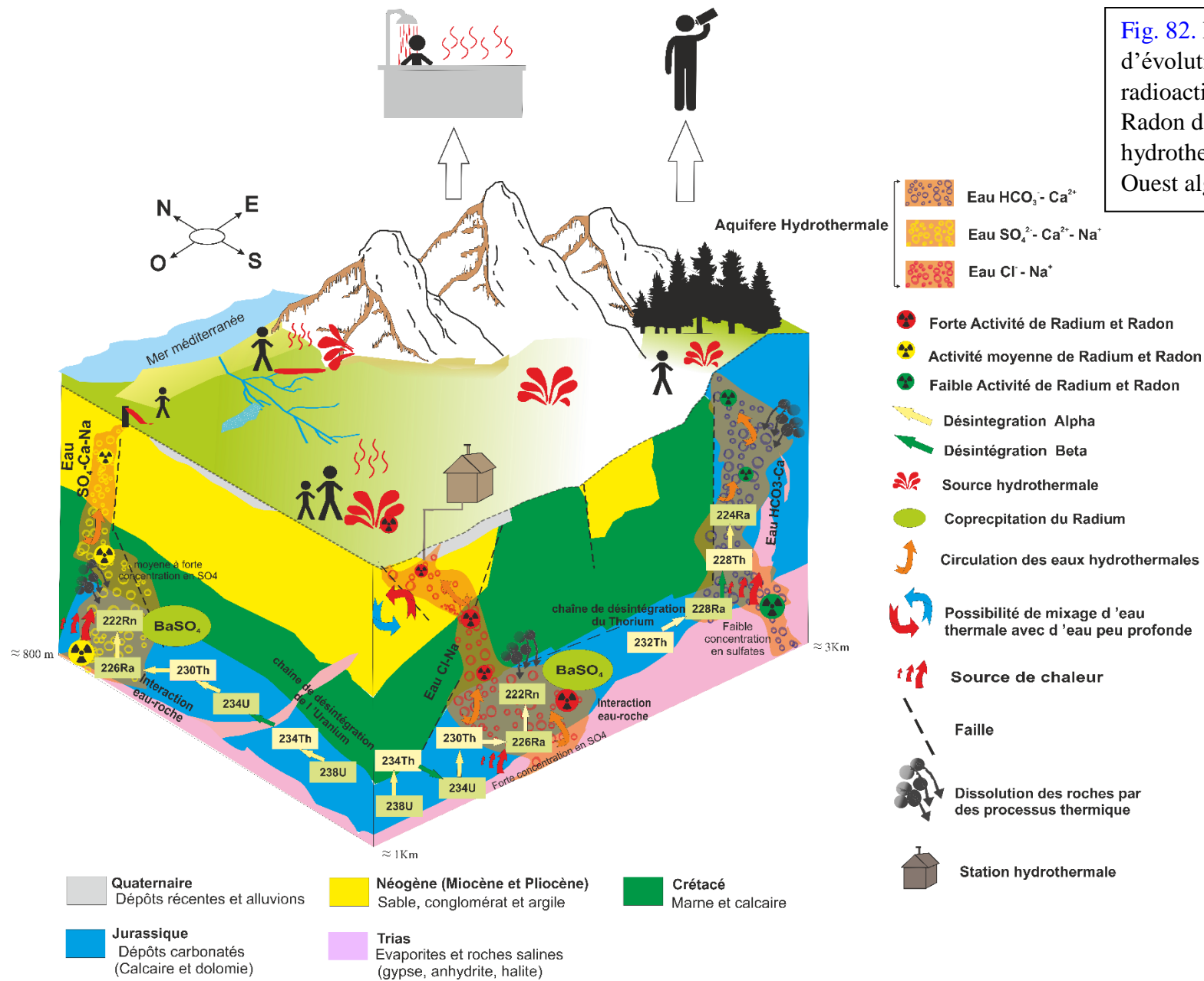


Fig. 81. Principaux facteurs contrôlant la migration et la distribution du Radium et du ²²²Radon dans les systèmes hydrothermaux étudiés



- Abdul-Hadi, A., Alhassanieh, O., Ghafar, M.,** 2001. Disequilibrium of uranium isotopes in some Syrian groundwater. *Appl. Radiat. Isot.*, 55, 109–113.
- Adelikhah, M., Shahrokhi, A., Chalupnik, S., Kov, T.** 2020. High level of natural ionizing radiation at a thermal bath in Dehloran, Iran. *Heliyon*, 6(March), 0–6. <https://doi.org/10.1016/j.heliyon.2020.e04297>
- Ahmad, S.T., Almuhsin, I.A., Hamad, W. M.,** 2021. Radon activity concentrations in Jale and Mersaid warm water springs in Koya District , Kurdistan Region - Iraq. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 0123456789. <https://doi.org/10.1007/s10967-021-07725-9>
- Ait Ouali, A. Issadi, A., Maizi, D., Ayadi, A., Bouhdjar, A.,** 2019. Geothermal potential in the Ouarsenis-Biban-Kabylie (North Central Algeria): hot spring catalogue. *Arabian Journal of Geosciences* 12:741.
- Akkaya, G., Kahraman, A., Koray, A., Kaynak, G.,** 2016. Variation in the radon concentrations and outdoor gamma radiation levels in relation to different geological formations in the thermal regions of Bursa, Turkey. *J. Radiol. Prot.* 36, 490–503.
- Alberto WD, del Pilar DaMa, Valeria AMa, Fabiana PS, Cecilia HA, de los Ángeles BMa.** 2001. Pattern Recognition Techniques for the Evaluation of Spatial and Temporal Variations in Water Quality. A Case Study:: Suquyía River Basin (Córdoba–Argentina) *Water Res.*, v.35, pp.2881–2894.
- Almasoud, F. I., Ababneh, Z. Q., Alanazi, Y. J., Uddin, M., & Sayyed, M. I.,** 2020. Assessment of radioactivity contents in bedrock groundwater samples from the northern region of Saudi Arabia. *Chemosphere*, 242, 125181. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2019.125181>
- Alonso-azcárate, J., Bottrell, S. H., & Mas, J. R.** 2006. Synsedimentary versus metamorphic control of S , O and Sr isotopic compositions in gypsum evaporites from the Cameros Basin, Spain. *Chemical Geology, Volume 234, Issues 1–2* 234, 46–57. <https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2006.04.004>
- Ames, L. L., McGarrah, J. E., and Walker, B. A.,** 1983. Sorption of trace constituents from aqueous solutions onto secondary minerals. I. Uranium. *Clays and Clay Minerals*, 31, 321–334
- Ameur, M** 1999. Histoire d'une plate-forme carbonatée de la marge Sud-Téthysienne: l'autochtone des Traras (Algérie occidentale) du Trias Supérieur jusqu'au Bathonien Moyen: *Doc. Lab. Géol. Lyon, France*, 399P.
- Ameur, M.,** 1988. Histoire d'une plate-forme carbonatée de la marge sud-téthysienne: autochtone des Traras (Algérie occidentale) du Trias supérieur jusqu'au Bathonien moyen. Thèse Docorat en es-Sciences, *Université Claude Bernard, Lyon*, 551 p.
- Andrews, J.N., Ford, D.J., Hussain, N., Trivedi, D., Youngman, M.J.,** 1989. Natural radioelement solution by circulating groundwaters in the Stripa granite. *Geochem. Cosmochim. Acta* 53, 1791–1802.
- Appelo, C. A. J.,** 1994. Cation and proton exchange, pH variations, and carbonate reactions in a freshening aquifer. *Water Resour. Res.* 30, 2793–2805.
- Arnold Molina Porras.** 2017. Apport du radon et des isotopes du radium à la caractérisation des circulations souterraines en domaine karstique Application à l'aquifère du Lez (Hérault, France). *Thèse doctorat en science de l'eau. Université de Montpellier. France.*

- Arnórsson, S., Gunnlaugsson, E. & Svavarsson, H.**, 1983. The chemistry of geothermal waters in Iceland. II. Mineral equilibria and independent variables controlling water compositions. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 47: 547–566.
- Ayari, J., Ouelhazi, H., Charef, A., & Barhoumi, A.** (2023). Delineation of seawater intrusion and groundwater quality assessment in coastal aquifers : The Korba coastal aquifer (Northeastern Tunisia). *Marine Pollution Bulletin*, 188(December 2022), 114643. <https://doi.org/10.1016/j.marpolbul.2023.114643>
- Baertschi, P. and Keil, R.**, 1992. Urangehalte von Oberflächen-, Quell und Grundwässern der Schweiz. NTB 91-26, *Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA)*, Wettingen
- Bakari, S. S., Aagaard, P., Vogt, R. D., Ruden, F., Johansen, I., & Vuai, S. A.** 2013. Strontium isotopes as tracers for quantifying mixing of groundwater in the alluvial plain of a coastal watershed, south-eastern Tanzania. *Journal of Geochemical Exploration*, 130, 1-14.
- Ball, J.W., Nordstrom, D.K., Jenne, E.A., Vivit, D.V.**, 1998. Chemical Analysis of Hot Springs, Pools, Geysers, and Surface Waters from Yellowstone National Park, Wyoming and its Vicinity, pp. 98e182. *USGS Open-File Report*.
- Ball, T.K., Cameron, D.G., Colman, T.B., Roberts, P.D.**, 1991. Behaviour of radon in the geological environment: a review. *Q. J. Eng. Geol. Hydrogeol.* 24, 169–182. doi:10.1144/GSL.QJEG.1991.024.02.01
- Barnes, Ivan, William Porter Irwin and Donald Edward White.** 1978. Global distribution of carbon dioxide discharges, and major zones of seismicity. *Water-Resources Investigations Report (1978)*.
- Beaucaire, C., Driaud, A., & Michard, G.** 1987. Controle des concentrations de certains elements trace (As, France). *Chem. Geol.*, 63, 85–99.
- Belayadi, I., Bezzeghoud, M., Nadji, A., Fontiela, J.**, 2017. North Occidental Algeria seismicity between 1790 and 2016: seismic catalog. *Comunicações Geológicas*, 104(1), 5.
- Belgacem, A., Souid, F., Telahigue, F., Kharroubi, A.**, 2015. Temperature and radon-222 as tracer of groundwater flow : application to El Hamma geothermal aquifer system, southeastern Tunisia. *Arab J Geosci*, 11161–11174. <https://doi.org/10.1007/s12517-015-1998-x>
- Belhai M., Fujimitsu Y., Bouchareb-Haouchine F.Z., Iwanaga T., Noto M., and Nishijima J.** 2016. Hydrogeochemical and isotope geochemical study of northwestern Algerian thermal waters. *Arabian Journal of Geosciences*, 9(3), 1-17
- Belhai, M., Fujimitsu, Y., Barragan-reyes, R. M., & Iwanaga, T.** 2022. Geothermics Insights into geochemical characteristics of the geothermal fluids of northwestern algeria : An updated conceptual model. *Geothermics*, 99(December 2021), 102304. <https://doi.org/10.1016/j.geothermics.2021.102304>
- Belhai, M., Fujimitsu, Y., Bouchareb-Haouchine, F.Z., Haouchine, A., Nishijima, J.** 2016. A hydrochemical study of the Hemmam Righa geothermal waters in north-central Algeria. *Acta Geochim* 35(3):271–287. <https://doi.org/10.1007/s11631-016-0092-8>
- Belkhiri, L., Mouni, L. & Tiri, A.**, 2012. Water–rock interaction and geochemistry of groundwater from the Ain Azel aquifer, Algeria. *Environmental Geochemistry and Health* 34: 1–13

- Benamar, M. A., Azzaz, H., & Kader, A.** 2023. Groundwater for Sustainable Development Chemical geothermometers and mixing models to understand the thermal aptitudes in the management of Bouhanifia and Saida geothermal resources , northwest of Algeria. *Groundwater for Sustainable Development*, 20(July 2022), 100863. <https://doi.org/10.1016/j.gsd.2022.100863>
- Bencherki A.** 2008. Réalisation d'une carte de vulnérabilité des nappes Phréatiques de la région de Saida, en Algérie, avec l'aide des Systèmes d'information géographique. *Thèse de Maitrise en études de l'environnement (MEE), Université de Moncton. 84 p.*
- Benest, M.,** 1985. Évolution de la plate-forme de l'Ouest algérien et du Nord-Est marocain au cours du Jurassique supérieur et au début du Crétacé : stratigraphie, milieu de dépôt et dynamique sédimentaire. *Thèse ès-Sciences, Lyon (1984). Doc. Lab. Géol. Lyon 95 (2 fasc.),581 pp*
- Bentley, H.W., Phillips, F.M., Davis, S.N.,** 1986. Chlorine-36 in the terrestrial environment. In: Fritz, P., Fontes, J.C. (Eds.), *Handbook of Environmental Isotope Geochemistry*, vol. 2B. *Elsevier, Amsterdam*, pp. 427–480.
- Berger, G., Schott, J., Guy, C.,** 1998. Behavior of Li, Rb and Cs during basalt glass and olivine dissolution and chlorite, smectite and zeolite precipitation from seawater: experimental investigations and modelization between 50 and 300 °C. *Chem. Geol.* 71, 297–312.
- Binet, S., Spadini, L., Bertrand, C., Guglielmi, Y., Mudry, J., and Scavia, C.** 2009. Variability of the groundwater sulfate concentration in fractured rock slopes: a tool to identify active unstable areas, *Hydrol. Earth Syst. Sci.*, 13, 2315–2327, <https://doi.org/10.5194/hess-13-2315-2009>.
- Birkle, P., Bundschuh, J., Sracek, O.,** 2010. Mechanism of arsenic enrichment in geothermal and petroleum reservoirs fluids in Mexico. *Water Res.* 44, 5605e5617.
- Bituh, T., Marovic, G., Petrinc, B., Sencar, J., & Franulovic, I.,** 2009. Natural radioactivity of ²²⁶Ra and ²²⁸Ra in thermal and mineral waters in Croatia. *Radiation Protection Dosimetry*, 133(2), 119–123.
- Blasco, M., Auqué, L. F., & Gimeno, M. J.** 2019. Geochemical evolution of thermal waters in carbonate – evaporitic systems : The triggering effect of halite dissolution in the dedolomitisation and albitisation processes. *Journal of Hydrology*, 570(January), 623–636. <https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2019.01.013>
- Bloch, S., And KEY, R. M.** 1981. Modes of formation of anomalously high radioactivity in oil-field brines. *Bull. Amer. Assoc. Petrol. Geol.* 65 (154-159)
- Boschetti, T., Awaleh, M. O., & Barbieri, M.** 2018. Waters from the Djiboutian Afar: a review of strontium isotopic composition and a comparison with Ethiopian waters and red sea brines. *Water*, 10(11), 1700.
- Bouaicha F.** 2018. Le géothermalisme de la région de Guelma. *Thèse de Doctorat de l'université Des Frères Mentouri - Constantine 1-*.
- Bouaicha, F., Dib, H., Bouteraa, O. et al.,** 2019. Geochemical assessment, mixing behavior and environmental impact of thermal waters in the Guelma geothermal system, Algeria. *Acta Geochim* 38, 683–702. <https://doi.org/10.1007/s11631-019-00324-2>
- Bouaicha, F, Dib, H, Belkhiri, L, Manchar, N & Chabour, N,** 2017. *Hydrogeochemistry and geothermometry of thermal springs from the Guelma region, Algeria. Journal of the Geological Society of India* 90.

- Bouchaou, L., Warner, N. R., Tagma, T., Hssaisoune, M., & Vengosh, A.** 2017. Applied Geochemistry The origin of geothermal waters in Morocco : Multiple isotope tracers for delineating sources of water-rock interactions. *Applied Geochemistry*, 84, 244–253. <https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2017.07.004>
- Bouchareb-Haouchine, F.Z.**, 2012. Etude Hydrochimique des Sources Thermales de l'Algérie du Nord- Potentialités Géothermiques. *These Doctorat en Sciences, USTHB, Algiers*, p. 135.
- Bouillin J. P.** 1977. Géologie alpine de la petite Kabylie dans la région de Collo et El Milia (Algérie). *Thèse Faculté des Sciences. Paris VI*, 511 pp.
- Boukhdimi M.A.** 2009. Origine de processus de bentonisation des terrains volcanogènes rhyolitique de Hammam Bouhrara (Maghnia ; Algérie Nord occidentale). *Mémoire de Magister, Université d'Oran*.
- Bouyahiaoui. B., Abtout, A., Hamal, L., Boukerbout, H., Djellit, H., Bougchiche, S., Sofiane, M. B., & BouabdAllah, H.** 2017. Structural Architecture of the Hydrothermal System from Geophysical Data in Hammam Bouhadjar Area (Northwest of Algeria). *Pure and Applied Geophysics*. <https://doi.org/10.1007/s00024-017-1479-0>
- Brindha, K., Paul, R., Walter, J., Tan, M. L., & Singh, M. K.** 2020. Trace metals contamination in groundwater and implications on human health : comprehensive assessment using hydrogeochemical and geostatistical methods. *Environmental Geochemistry and Health*, 9. <https://doi.org/10.1007/s10653-020-00637-9>
- Brown, P.L., Ekberg, C., Matyskin, A.V.**, 2019. On the solubility of radium and other alkaline earth sulfate and carbonate phases at elevated temperature. *Geochim. Cosmochim. Acta* 255, 88–104. <https://doi.org/10.1016/j.gca.2019.04.009>
- Can, I.**, 2002. A new improved Na/K geothermometer by artificial neural networks. *Geothermics* 31: 751–760.
- Chabour, N, Mebrouk, N, Hassani, M I, Upton, K, Ó Dochartaigh, B É et Bellwood-Howard, I.** 2018. Africa Groundwater Atlas : Hydrogeology of Algeria. *British Geological Survey*. https://earthwise.bgs.ac.uk/index.php/Hydrogeology_of_Algeria
- Chalouan, A., Michard, A., El Kadiri, K., Negro, F., Frizon de Lamotte, D., Soto, J.I., Saddiqi, O.**, 2008. The Rif belt. In: Michard, A., et al. (Eds.), Continental Evolution: The Geology of Morocco, 116. Lecture Notes in *Earth Sciences, Springer-Verlag Berlin Heidelberg*, pp. 203–302
- Charette, M.A., Morris, P.J., Henderson, P.B., Moore, W.S.**, 2015. Radium isotope distributions during the US GEOTRACES North Atlantic cruises. *Mar. Chem.* 177, 184–195. <https://doi.org/10.1016/j.marchem.2015.01.001>.
- Chaudhuri, H., Das, N.K., Bhandari, R.K., Sen, P., Sinha, B.**, 2010. Radon activity measurements around Bakreswar thermal springs. *Radiat. Meas*, 45, 143–146.
- Chenaker, H., Houha, B., Vincent, V.**, 2018. Hydrogeochemistry and geothermometry of thermal water from north- eastern Algeria *Geothermics Hydrogeochemistry and geothermometry of thermal water from north- eastern Algeria. Geothermics*, 75(May), 137–145. <https://doi.org/10.1016/j.geothermics.2018.04.009>

- Choppin, G.R., Liljenzin, J.O., Rydberg, J.,** 2002. *Radiochemistry and nuclear chemistry*. 3rd Edition, Butterworth-Heinemann, Woburn.
- Choukroune P., & Seguret, M.,** 1973. La tectonique des Pyrénées. Discussion sur le rôle du serrage et de la gravité à partir de l'étude des directions principales de la déformation. In „*gravity and tectonics*”, Whily and sons, Intersciences (Eds), New York, pp. 141-156.
- Christensen, J. N., Dafflon, B., Shiel, A. E., Tokunaga, T. K., Wan, J., Faybishenko, B., & Hubbard, S. S.** 2018. Using strontium isotopes to evaluate the spatial variation of groundwater recharge. *Science of the Total Environment*, 637, 672-685.
- Ciszak R.** 1993. Évolution géodynamique de la chaîne tellienne en Oranie (Algérie occidentale) pendant le Paléozoïque et le Mésozoïque. *Strata*, v. 2, p. 1-513.
- Clair A.** 1952. Etude hydrogéologique des monts de Saida. *Rapport de synthèse, Agence Nationale des Ressources en Eau, Alger*.
- Clark, J.F., Turekian, K. K.,** 1990. Time scale of hydrothermal water-rock reactions in Yellowstone National Park based on radium isotopes and radon. *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 40, 169–180.
- Clever, H.L.,** 1985. Temperature Dependency of the Diffusion Coefficient 'k'. In: Solubility Data Series, Krypton, Xenon, Radon Gas Solubilities 2. *Pergamon Press, Oxford*, pp. 463–468.
- Cohn, P.S.R., Burger, S., Fagliano, J., Klotz, J.,** 2003. Radium in Drinking Water and the Incidence of Osteosarcoma. Division of Epidemiology, Environmental and Occupational Health, *New Jersey Department of Health and Senior Services, New Jersey* , p. 17.. <https://rucore.libraries.rutgers.edu/rutgers-lib/17230/PDF/1/play/>.
- Condomines, M., Gourdin, E., Gataniou, D., Seidel, J.L.,** 2012. Geochemical behaviour of Radium isotopes and Radon in a coastal thermal system (Balaruc-les-Bains, South of France). *Geochim. Cosmochim. Acta* 98, 160–176.
- Condomines, M., Lloret, E., Seidel, J.-L., Lopez, M.,** 2014. $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratios in hydrothermal carbonates and the origin of radium in CO_2 -rich waters of the Lodève Basin (South of France). *Chem. Geol.* 372, 46–53. <https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2014.02.008>.
- Condomines, M., Rihs, S., Lloret, E., Seidel, J.L.,** 2010. Determination of the four natural Ra isotopes in thermal waters by gamma-ray spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes*, 68(2), 384–391. <https://doi.org/10.1016/j.apradiso.2009.10.056>
- Cornet, M.M., Gousskov, N., Dalloni, M., Deleau, P., et al.,** 1952. Extrait de la Carte géologique de l'Algérie. Direction du commerce, de l'énergie et de l'industrie, *Service de la carte géologique*.
- Cramer, J.J., Vilks, P., Larocque, J.P.A.,** 1988. Near field analogue features from the Cigar lake Uranium Deposit. Proc. Natural Analogues in radioactive Waste Disposal. *Symposium Brussels 28.-30.4.1987, B. Côme et al. CEC-Report Nr. Eur 11037*
- Dabbagh, R., Ghafourian, H., Baghvand, A., Nabi, G.R., Riahi, H., Nakhli, A.,** 2006. Discovery of the second highest level of radioactive mineral spring in Iran. *J Radioanal Nucl Chem* 269(1):91–94.
- Daniele, L., Vallejos, Á., Corbella, M., Molina, L., & Pulido-bosch, A.** 2013. Applied Geochemistry Hydrogeochemistry and geochemical simulations to assess water – rock interactions in complex

- carbonate aquifers : The case of Aguadulce (SE Spain). *Applied Geochemistry*, 29, 43–54. <https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2012.11.011>
- Davidson, M.R., Dickson, B.L.** 1986. A Porous Flow Model for Steady State Transport of Radium in Groundwater. *Water Resources Research. Volume 22, Issue 1, January 1986, Pages 34-44*
- Davis Jr, R., & Schaeffer, O. A.** 1955. Chlorine-36 in nature. *Annals of the New York Academy of Sciences*, 62(5), 107-121.
- Davis, J.C.**, 2002. Statistics and data analysis in geology. *J. Wiley* (New York): xvi, 638.
- De Vivo B, Ippolito F, Capaldi G & Simpson PR.** 1984. Uranium geochemistry, mineralogy, geology, exploration and resources. Stephen Austin. *Hertford, UK (201 pp), pp 109–116*
- Dearlove, J.P., Longworth, G., Ivanovich, M., Kim, J.-I., Delakowitz, B., Zeh, P.**, 1991. A study of groundwater colloids and their geochemical interactions with natural radionuclides in Gorleben aquifer systems. *Radiochem. Acta 52-3, S. 83-89.*
- Debieche, T. H.**, 2002. Evolution de la qualité des eaux (salinité, azote et minéraux lourds) sous l'effet de la pollution saline, agricole et industrielle. Application à la basse plaine de la Seybouse- Nord-Est Algérien. Thèse de doctorat, *U. F. R. des Sciences et Techniques de l'Université de Franche-Comté, France* (199 p).
- Delfaud J., Michaux J., Neurdin J. & Revet J.** 1973. Un modèle paléogéographique de la bordure méditerranéenne : évolution de la région Oranaise (Algérie) au Miocène supérieur. *Bull. Soc. Hist. Nat. Afr. Nord., Alger. t. 64, fasc. 1 et 2, p. 219-241.*
- Demena A.** 1956. Une importante source thermale près d'Ain Franin (Route d'Oran à Ain Franin), La source "YEPSERRA". *Extrait du bulletin de la société de géographie et d'Archéologie d'Oran.*
- De Simone, L.A., Howes, B.L., Barlow, P.M.**, 1997. Mass.Balance analysis of reactive transport and cation-exchange in a plume of wastewater-contaminated groundwater. *J. Hydrol.* 203, 228-246.
- Dickson, B.L.**, 1990. Radium in groundwater. In: *The Environmental Behavior of Radium. Technical Reports Series, vol. 1, no. 310. IAEA, Vienna, pp. 335–372.*
- Dickson, B.L., Giblin, A.M., Snelling, A.**, 1987. The source of radium in anomalous accumulations near sandstone escarpments, Australia. *Applied Geochemistry*, 2, 385-398.
- Domzig A., Yelles A-K., Le Roy C., Déverchère J., Bouillin J-P., Bracene R et al.**, 2006. Searching for the Africa–Eurasia Miocène boundary offshore western Algeria (Maradja'03 cruise). *C R Geosci 338: 80–91*
- Dulaiova, H., Gonnee, M.E., Henderson, P.B. and Charette, M.A.**, 2008. Geochemical and physical sources of radon variation in a subterranean estuary - Implications for groundwater radon activities in submarine groundwater discharge studies. *Marine Chemistry 110(1-2), 120-127*
- Duong, H.V., Dinh, C., Jakub, N., Tibor, N., Quy, K., Hoang,** 2018. Uranium and radium isotopes in some selected thermal, surface and bottled waters in Vietnam. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* volume 319, pages1345–1349. <https://doi.org/10.1007/s10967-018-6317-z>
- Durand Delga M. et Fontbote J. M.** 1980 - Le cadre structural de la méditerranée occidentale. *Colloque C5. Géologie des chaînes alpines issues de la Téthys, 26° CGI, BRGM.*

- Durand Delga M.**, 1969. Mise au point sur la structure du Nord-Est de la Berbérie. Publ. Serv. Carte géol. Algérie, N. S., *Bull. n°39*, pp 89-131, 9 fig.
- Durecová, A., Durec, F., Bursová, D.**, 2006. Determination of ^{226}Ra , ^{224}Ra , ^{223}Ra and ^{228}Ra in mineral water samples of the Slovak Republic. *Czechoslov. J. Phys.* 56, 247–255. <http://dx.doi.org/10.1007/s10582-006-0511-x>.
- Durridge Company Inc.**, 2013. Big bottle Rad H₂O User Manual: High Sensitivity Radon in Water Accessory. *Revision 2013-09-03*.
- Edmunds, W. M., Smedley, P. L. and Spiro, B.** 1995. Controls on the geochemistry of sulphur in the East Midlands Triassic Aquifer, UK. *Proceedings of an International Symposium on Isotopes in Water Resources Management, 20-24 March 1995, IAEA-SM-336-20*, pp. 107- 122. IAEA, Vienna
- Eller, K. T., Burnett, W. C., Fitzhugh, L. M., & Chanton, J. P.** 2013. Radium Sampling Methods and Residence Times in St. Andrew Bay, Florida. *Estuaries and Coasts*. <https://doi.org/10.1007/s12237-013-9661-9>
- Ellis, A., Mahon, W.**, 1977. Chemistry and Geothermal Systems. Academic Press. Giggenbach, W., 1981. Geothermal mineral equilibria. *Geochim. Cosmochim. Acta* 45, 393–410.
- Ellis, A.J.**, 1970. Quantitative interpretation of chemical characteristics of hydrothermal systems. *Geothermics* 2: 516–528.
- Ellis, A.J., and Mahon, W.A.J.**, 1977. *Chemistry and geothermal systems*. Academic Press, New York, 392 pp.
- Elmi, S** 1971. Les zones d’ammonites dans la série Bajocien supérieur-Callovien de l’Oranie (Ouest algérien). *Bull. Soc. Géol. France* 13: 8-37
- Elmore, D.**, et al., Analysis of ^{36}Cl in environmental water samples using an electrostatic accelerator, *Nature (London)* 277 (1979) 22-25.
- Erees, F.S., Yener, G., Salk, M., Özbal, Ö.**, 2006. Measurements of radon content in soil gas and in the thermal waters in Western Turkey. *Radiation Measurements*, 41, 354–361. <https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2005.06.030>
- Fajardo, L.F., Berthrong, M., Anderson, R.E.**, 2001. Radiation pathology. *Oxford University Press, Oxford*.
- Faraj, T., Ragab, A., El Alfy, M.**, 2020. Geochemical and hydrogeological factors influencing high levels of radium contamination in groundwater in arid regions. *Environ. Res.* 184. <https://doi.org/10.1016/j.envres.2020.109303>.
- Fekraoui A, Abouriche M.** 1995. Algeria country update report. In: *Proceedings of the World Geothermal Congress, vol. 1*; p. 31–4
- Fekraoui, A.**, 2007. Caractéristiques géochimiques des eaux géothermales de la région d’Oran. *Revue des Energies Renouvelables CER’07 Oujda* 75 – 80.
- Fenet, B.** 1975. Recherche sur l’Alpinisation de la Bordure Septentrionale du Bouclier Africain à Partir de l’Etude d’un Elément de l’Orogenèse Nord Maghrébine, Les Monts du Djebel Tessala et les Massifs du Littoral Oranais’, *Thèse de Doctorat d’Etat*.

- Fernando, W.A.M., Iankoon, I.M.S.K., Syed, T.H., Yellishetty, M.,** 2018. Challenges and opportunities in the removal of sulphate ions in contaminated mine water: a review. *Miner. Eng.* 117, 74e90. <https://doi.org/10.1016/j.mineng.2017.12.004>
- Finkelstein, M.M.,** 1994. Radium in drinking water and the risk of death from bone cancer among Ontario youths. *Can. Med. Assoc. J.* 151, 565–571. <https://www.ncbi.nlm.nih.gov/pmc/articles/PMC1337191/pdf/cmaj00053-0075.pdf>.
- Finkelstein, M.M., Kreiger, N.,** 1996. Radium in drinking water and risk of bone cancer in Ontario youths: a second study and combined analysis. *Occup. Environ. Med.* 53, 305–311. <https://doi.org/10.1136/oem.53.5.305>.
- Fournier, R.O. & Truesdell, A.H.,** 1973. An empirical Na-K-Ca geothermometer for natural waters. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 37: 1255–1275.
- Fournier, R. O.,** 1979. A Revised Equation for the NA/K Geothermometer. Geothermal Resources Council, 221-224p (Davis, Calif.).
- Fourré, E., Napoli, R. Di, Aiuppa, A., Parello, F., Gaubi, E., Jean-baptiste, P., Allard, P., Calabrese, S., & Mamou, A. Ben.** 2011. Regional variations in the chemical and helium – carbon isotope composition of geothermal fluids across Tunisia. *Chemical Geology*, 288(1–2), 67–85. <https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2011.07.003>
- Füchtbauer, Hans.,** 1988. Clay minerals and their diagenesis in carbonate-rich sediments (Leg 101, sites 626 and 627). In: Austin, JA Jr.; Schlager, W; et al. (eds.), *Proceedings of the Ocean Drilling Program, Scientific Results, College Station, TX (Ocean Drilling Program), 101, 171-177*, <https://doi.org/10.2973/odp.proc.sr.101.135.1988>
- Füchtbaur, H (Hrsg.), Dietrich, H., Müller, G., Richter, D.K., Schminke, H.-U., Schneider, H.-J., Valetton, I., Walther, H.W., Wolf, M.,** 1988. Sedimente und Sedimentgesteine-Teil II Sediment-Petrologie. *Schweizerbart'sche Verlagsbuchhandlung, Stuttgart, 4. Neuberarb. Aufl.*
- Gainon, F.** 2008. Les isotopes radioactifs de la série de l'uranium-238 (222Rn, 226Ra, 234 U et 238U) dans les eaux thermales de Suisse Sites d'Yverdon-les-Bains, Moiry, Loèche-les-bains, Saxon, Val d'Illiez, Bad Ragaz, Delémont, Lavey-les-Bains, Brigerbad et Combioula. *Thèse de Doctorat Présentée à La Faculté Des Sciences de l'Université de Neuchâtel Pour l'obtention Du Grade de Docteur Ès Sciences*, 238, 160.
- Gainon, F., Goldscheider, N. & Surbeck, H.** 2007. Conceptual model for the origin of high radon levels in spring waters - the example of the St. Placidus spring, Grisons, Swiss Alps. *Swiss Journal of Geosciences* 100, 251 - 262.
- Gainon, F., Surbeck, H. & Zwahlen, F.** 2007. Natural radionuclides in groundwater as pollutants and as useful tracer. *Water-Rock interaction 12, Kunming, China, Taylor & Francis, London 1: 735 – 738*
- Galhardi, J.A., Bonotto, D.M.,** 2016. Hydrogeochemical features of surface water and groundwater contaminated with acid mine drainage (AMD) in coal mining areas: a case study in southern Brazil. *Environ. Sci. Pollut. Res.* 23, 18911e18927. <https://doi.org/10.1007/s11356-016-7077-3>

- Gambardella, B., & Marini, L.** 2005. Dissolved potassium in the shallow groundwaters circulating in the volcanic rocks of central-southern Italy. *Applied Geochemistry*, 20, 875–897. <https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2004.12.001>
- Garcia-Solsona E., Garcia-Orellana J., Masqué P., Dulaiova H.,** 2008. Uncertainties Associated with ^{223}Ra and ^{224}Ra Measurements in Water via a Delayed Coincidence Counter (RaDeCC). *Marine Chemistry* 109 (3-4): 198–219. doi:10.1016/j.marchem.2007.11.006.
- Gascoyne, M.** 1992. Geochemistry of actinide and their daughters. (34–61). In Ivanovich and R.S. Harmon (ed). Uranium series disequilibrium : Applications to earth, marine, and environmental sciences : 2nd ed. Clarendon Press, Oxford.
- Gattacceca, J.C., Mayer, A., Cucco, A., Claude, C., Radakovitch, O., Vallet-Coulomb, C., Hamelin, B.,** 2011. Submarine groundwater discharge in a subsiding coastal lowland: A ^{226}Ra and ^{222}Rn investigation in the Southern Venice lagoon. *Applied Geochemistry* 26 (2011) 907–920.
- German Montes-Hernandez, François Renard, Anne-Line Auzende, Nathaniel Findling.** 2020. Amorphous Calcium–Magnesium Carbonate (ACMC) Accelerates Dolomitization at Room Temperature under Abiotic Conditions. *Crystal Growth & Design*, 2020, 20 (3), pp.1434-1441.
- Giggenbach, W.F.,** 1988. Geothermal solute equilibria. Derivation of Na-K-Mg-Ca geothermometers. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 52: 2749–2765.
- Giggenbach, W.F., Goguel, R.L.,** 1989. Collection and Analysis of Geothermal and Volcanic Water and Gas Discharges, 4th ed. Department of Scientific and Industrial Research, Chemistry Division, Petone, New Zealand. Report No.: CD 2401.
- Gilkeson, R.H., Cartwright, K., Cowart, J.B., Holtzman, R.B.,** 1983. Hydrologic and Geochemical Studies of Selected Natural Radioisotopes and Barium in Groundwater in Illinois. *Univ. Illinois Water Res. Center (Rept. 83-0180)*.
- Girault, F., F. Perrier, and T. A. Przylibski.** 2016. Radon-222 and radium-226 occurrence in water: A review. *Geol. Soc. London, Spec. Publ.* 451: SP451.3.
- Goldschmidt, B.,** 1938. Sur la précipitation mixte des sulfates de baryum et strontium. *CR Hebd. Séances Acad. Sci, 1938, vol. 206, p. 1110.*
- Gonnea, M.E., Morris, P.J., Dulaiova, H., Charette, M.A.,** 2008. New perspectives on radium behavior within a subterranean estuary. *Mar. Chem.* 109, 250–267.
- Grandia, F., Merino, J., & Bruno, J.** 2008. Assessment of the radium-barium co-precipitation and its potential influence on the solubility of Ra in the near-field. *Technical Report. TR-08-07. Svensk Kärnbränslehantering AB Swedish Nuclear Fuel and Waste Management. Co Box 250, SE-101 24 Stockholm.*
- Greenwood, N.N., Earnshaw, A.,** 1990. *Chemie der Elemente.* Übers. Von Hückmann, K., VCH, Weinheim-Basel-Cambridge-New York, 1. *Korr. Nachdr. Der 1. Aufl.*
- Griffin, C., Kaufman, A., Broecker, W.,** 1963. Delayed coincidence counter for the assay of actinon and thoron. *J. Geophys. Res.* 68, 1749–1757

- Grundl, T., Cape, M.,** 2006. Geochemical factors controlling radium activity in a sandstone aquifer, *Ground Water*, 44(4), 518–527.
- Guardia, P.,** 1975. Géodynamique de la marge alpine du continent africain d'après l'étude de l'Oranie nord occidentale. Relations structurales et paléogéographiques entre le Rif externe, le Tell et l'avant-pays atlasique. *Thèse Doc Es Sci. Université de Nice. N.A.O.11 417.*
- Guerrero, J.L., Vallejos, Á., Cerón, J.C., Sánchez-Martos, F., Pulido-Bosch, A., Bolívar, J.P.,** 2016. U-isotopes and ^{226}Ra as tracers of hydrogeochemical processes in carbonated karst aquifers from arid areas. *J. Environ. Radioact.* 158–159, 9–20.
- Guigue, S.** 1940. Les sources thermo-minérales de l'Algérie. *Bulletin du Service de la Carte Géologie Appliquée, Alger.*
- Guillén, J., Tejado, J.J., Baeza, A., Salas, A. & Muñoz-Munoz, J.G.** 2014. Environmental impact of a granite processing factory as source of naturally occurring radionuclides. *Applied Geochemistry*, 47, 122–129.
- Hadour, A., Mahé, G., Meddi, M.** 2020. Regional Studies Watershed based hydrological evolution under climate change effect : An example from North Western Algeria. *Journal of Hydrology: Regional Studies*, 28(April 2019), 100671. <https://doi.org/10.1016/j.ejrh.2020.100671>
- Hammond, D.E., Zukin, J.G., Ku, T.L.,** 1988. The kinetics of radioisotope exchange between brine and rock in a geothermal system, *J. Geophys. Res.* 93 B 11 13175-13186.
- Hassani M.I,** 1987. Hydrogéologie d'un bassin Endoréique semi-aride ; « le bassin versant de la grande Sebkhia d'Oran (Algérie) ». *Thèse 3ème cycle. Univ. scientifique, technologique et médicale de Grenoble, France, pp. 304.*
- Hawthorne F C, Krivovichev S V, Burns P C,** 2000. The crystal chemistry of sulfate minerals. In: Jambor, J.L., Nordstrom, D.K. (Eds.), *Sulfate Minerals: Crystallography, Geochemistry and Environmental Significance. Reviews in Mineralogy and Geochemistry*, 40, *Mineralogical Society of America and Geochemical Society, Washington, D.C., 1–112.*
- Hess. C. T., Michel. J., Horton. T.R., Prichard. H.M., and Coniglio. W.A.,** 1985. "The Occurrence of Radioactivity in Public Water Supplies in the United States," *Health Physics*, vol. 48, pp. 553-586.
- Hirunwathanakul, P., Sriplung, H., Geater, A.,** 2006. Radium contaminated water: a risk factor for cancer of the upper digestive tract. *Asian Pac. J. Cancer Prev.* 7, 295–298. <https://pubmed.ncbi.nlm.nih.gov/16839204/>.
- Hoehn. E and H. Von Gunten.** 1989. A tool to assess infiltration from surface waters to aquifers," *Water Resources Research*, vol. 25, pp. 1795-1803, 1989.
- Humphreys. C.L.,** 1987. Factors Controlling Uranium and Radium Isotopic Distributions in Groundwaters of the West-Central Florida Phosphate District. Radon in groundwater. *Barbara graves. (171-189).*

- Hussain N., Church T.M., and G. Kim. 1999.** Use of ^{222}Rn and ^{226}Ra to trace groundwater discharge into the Chesapeake Bay. *Marine Chemistry*, vol. 65, pp. 127-134.
- IAEA. 2010.** Analytical methodology for the determination of radium isotopes in environmental samples. *Analytical Quality in Nuclear Applications No. IAEA/AQ/19*, Vienna.
- IAEA. 2014.** The environmental behaviour of radium: *revised edition*. Vienna.
- IAEA. 2016.** Criteria for Radionuclide Activity Concentrations for Food and Drinking Water (*IAEA-TECDOC-1788*).
- IARC (International Agency for Research on Cancer). 2013.** Monographs on the Evaluation of Carcinogenic Risks to Humans. Non-ionizing Radiation, Part 2: *Radiofrequency Electromagnetic Fields*, vol. 102 WHO, Lyon, France.
- Issaadi, A., 1992.** Le Thermalisme dans son Cadre Geostructural, Apport à la connaissance de la structure profonde de l'Algérie et de ses Ressources Geothermales. *These Doctorat d'Etat, Univ.Sci.et Tech. Alger*.
- Jellouli Amine , Abderrazak El Harti, Zakaria Adiri, Mohcine Chakouri, Jaouad El Hachimi, El Mostafa Bachaoui., 2021.** Application of optical and radar satellite images for mapping tectonic lineaments in kerdous inlier of the Anti-Atlas belt, Morocco, *Remote Sensing Applications: Society and Environment, Volume 22*.
- Jones, M.J., Butchins, L.J., Charnock, J.M., Patrick, R.A.D., Small, J.S., Vaughan, D.J., Wincott, P.L., Livens, F.R., 2011.** Reactions of radium and barium with the surfaces of carbonate minerals. *Appl. Geochem.* 26, 1231–1238. <https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2011.04.012>.
- Kaasalainen, H., Stefansson, A., Giroud, N., Arnorsson, S., 2015.** The geochemistry of trace elements in geothermal fluids, Iceland. *Appl. Geochem.* 62, 207–223.
- Kadko, D., Gronvold, K., Butterfield, D., 2007.** Application of radium isotopes to determine crustal residence times of hydrothermal fluids from two sites on the Reykjanes Peninsula, Iceland. *Geochim. Cosmochim. Acta* 71, 6019–6029. <https://doi.org/10.1016/j.gca.2007.09.018>
- Karingithi, C.W., 2009.** Chemical Geothermometers for Geothermal Exploration in Short Course IV on Exploration for Geothermal Resources.
- Kedaid, F.Z. 2007.** Database on the geothermal resources of Algeria. 36,265-275. doi:10.1016/j.geothermics.2007.02.002
- Keesari, T., Sabarathinam, C., & Kumar, U. 2022.** Chemosphere Fate and transport of strontium in groundwater from a layered sedimentary aquifer system. *Chemosphere*, 307(P4), 136015. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2022.136015>
- Kelly, R.P., Moran, S.B., 2002.** Seasonal changes in groundwater input to a well-mixed estuary estimated using radium isotopes and implications for coastal nutrient budgets. *Limnol. Oceanogr.* 47 (6), 1796–1807

- Kharatian, K., Travi, Y. & Igoumnov, V.**, 2002. Radon soil-gas concentrations and local seismicity: Case of the Arax basin (Armenia). *Activité du gaz radon dans l'air du sol et sismicité locale: Exemple du bassin de l'Arax (Arménie)* 334(3): 179-185
- Kieken, M.** 1962. Les traits essentiels de la géologie algérienne. Livre à la mémoire du professeur Paul Fallot, Mémoire hors série de *la Société géologique de France, t. I, p. 545-644.*
- Kim, G., Burnett, W.C., Dulaiova, H., Swarzenski, P.W., Moore, W.S.**, 2001. Measurement of ²²⁴Ra and ²²⁶Ra Activities in Natural Waters Using a Radon-in-Air Monitor. *Environ. Sci. Technol.* 35, 4680–4683. doi:10.1021/es010804u
- Knoll, G.F.**, 2010. Radiation detection and measurement. *John Wiley & Sons.*
- Kraemer, T.F., Reid, D.F.**, 1984. The occurrence and behavior of radium in saline formation water of the US Gulf Coast region. *Chem. Geol.* 2, 153–174. [https://doi.org/10.1016/0009-2541\(84\)90186-4](https://doi.org/10.1016/0009-2541(84)90186-4)
- Krishnaswami, S., Graustein, W.C., Turekian, K.K, Dowd, J.F.**, 1982. Radium, thorium, and radioactive lead isotopes in ground waters: application to the in-situ determination of adsorption rate constants and retardation factors. *Water Resour. Res.* 18, 1663-1675.
- Krishnaswami, S., Bhushan, R., Baskaran, M.**, 1991., Radium isotopes and ²²²Rn in shallow brines, Kharaghoda (India). *Chem. Geol. Isotope Geosci. Sect.* 87, 125–136.
- Kronfeld, J., E. Gradsztajn, H.W. Müller, J. Radin, A. Yaniv, R. Zach.**, 1975. Excess ²³⁴U: An aging effect in confined waters, *Earth and Planetary Science Letters, Volume 27, Issue 2, Pages 342-345,*
- Ku, T.L., Luo, S., Hammond, D., Leslie, B.**, 1992. Applications of decay-series disequilibria to water-rock interactions and geothermal systems. In: Ivanovich, M., Harmon, R.S. (Eds.), *Uranium-Series Disequilibrium: Applications to Earth, Marine, and Environmental Sciences, 2nd ed. Clarendon Press, pp. 631-668.*
- Kudryavskii, Y. P., & Rakhimova, O. V.** 2007. Coprecipitation of Radium with Barium Sulfate from Salt Solutions. *Radiochemistry*, 49(5), 541–544. <https://doi.org/10.1134/S1066362207050177>
- L'Annunziata, M.**, 2012. Handbook of radioactivity analysis, 3rd ed. *Elsevier.*
- Lagacé, F., Foucher, D., Clarisse, O.**, 2018. Radium geochemical monitoring in well waters at regional and local scales: an environmental impact indicator-based approach. *Chemosphere*, 205(Chemosphere), 627–634. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2018.04.098>
- LaMont, S.P., Gehrke, R.J., Glover, S.E., Filby, R.H.**, 2001. Precise determination of the intensity of ²²⁶Ra alpha decay to the 186 keV excited state. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 248, 247–253
- Lamontagne, S., Taylor, A.R., Herpich, D., Hancock, G.J.**, 2015. Submarine groundwater discharge from the South Australian Limestone Coast region estimated using radium and salinity. *J. Environ. Radioact.* 140, 30–41. doi:10.1016/j.jenvrad.2014.10.013
- Langguth, R (ed)** .1984. List of terms of hydrogeology, geochemistry and geothermal of mineral and thermal waters. *IAH, International Contributions to Hydrogeology Vol. 3. Publ. H. Heyse, Hannover, 91 pp.*

- Langmuir, D.**, 1978. Uranium solution- mineral equilibria at low temperatures with applications to sedimentary ore deposits. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 42, 547-569
- Langmuir, D., and D. Melchior.** 1985. The geochemistry of Ca, Sr, Ba and Ra sulfates in some deep brines from the Palo Duro Basin, Texas. *Geochim et Cosmochim Acta* 49, no. 11: 2423– 2432.
- Langmuir, D., Riese, A.,** 1985. The thermodynamic properties of radium. *Geochim et Cosmochim Acta* 49, no. 7: 1593–1601.
- Lauer, N., Vengosh, A.,** 2016. Age dating oil and gas wastewater spills using radium isotopes and their decay products in impacted soil and sediment. *Environ. Sci. Technol. Lett.* 3, 205–209. <https://doi.org/10.1021/acs.estlett.6b00118>.
- Lederer, M., Hollander, J.M., Perlman, I.,** 1967. Table of Isotopes, 6ème. ed. Wiley, New York.
- Lee, J.M., Kim, G.,** 2006. A simple and rapid method for analyzing radon in coastal and ground waters using a radon-in-air monitor. *J. Environ. Radioact.* 89, 219–228. doi:10.1016/j.jenvrad.2006.05.006
- Leprêtre, R., Lamotte, D. F. De, Combiér, V., Gimeno-vives, O., Mohn, G., & Eschard, R.** 2018. The Tell-Rif orogenic system (Morocco , Algeria , Tunisia) and the structural heritage of the southern Tethys margin. *BSGF - Earth Sciences Bulletin*, 189, 10, 35.
- Lepvrier C.** 1978. Les plis couchés synschisteux des massifs du Chelif (Tell algérois, Algérie) : une tectonique d'âge Crétacé supérieur? *Rev. Géol. Dyn. Géogr. Phys.*, 20 (1978), pp. 123–136
- Li, X., Gan, Y., Zhou, A., Liu, Y.,** 2015. Relationship between water discharge and sulfate sources of the Yangtze River inferred from seasonal variations of sulfur and oxygen isotopic compositions. *J. Geochem. Explor.* 153, 30e39. <https://doi.org/10.1016/j.gexplo.2015.02.009>.
- Lieser, K.H.,** 2001. Nuclear and radiochemistry: fundamentals and applications, 2ème. ed. Wiley-VCH, Weinheim.
- Lieser, K.H., Ament, A., Hill, R., Singh, R.N., Stingi, U., Thybusch, B.,** 1990. Colloids in groundwater and their influence on migration of trace elements and radionuclides. *Radiochim. Acta* 49, 83–100. <https://doi.org/10.1524/ract.1990.49.2.83>
- Liu, Z., Feng, S., Zhangsong, A., Han, Y., & Cao, R.** 2023. Long-term evolution of groundwater hydrochemistry and its influencing factors based on self-organizing map (SOM). *Ecological Indicators*, Volume 154.
- Luis Guerrero, J., Vallejos, A., Carlos Ceron, J., Sanchez-Martos, F., Pulido-Bosch, A., Pedro Bolivar, J.,** 2016. U-isotopes and Ra-226 as tracers of hydrogeochemical processes in carbonated karst aquifers from arid areas. *J. Environ. Radioact.* 158, 9–20. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2016.03.015>
- Magesh, N. S., Chandrasekar, N., & Elango, L.** 2017. Trace element concentrations in the groundwater of the Tamiraparani river basin, South India: Insights from human health risk and multivariate statistical techniques. *Chemosphere*, 185, 468–479. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2017.07.044>

- Marović, G., Senčar, J., Franić, Z., Lokobauer, N., 1996.** Radium-226 in thermal and mineral springs of Croatia and associated health risks. *J. Environ. Radioact.* 33, 309–317.
- Martin, P., Akber, R.A., 1999.** Radium isotopes as indicators of adsorption-desorption interactions and barite formation in groundwater. *Journal of Environmental Radio- activity* 46, 271–286.
- Mas-Pla, J., Mencio, A., Bach, J., Zamorano, M., Soler, D., Brusi, D. 2016.** Trace element groundwater pollution hazard in regional hydrogeological systems (Empord? a Basin, NE Spain). *Water Air Soil Pollut.* 227, 218. <http://dx.doi.org/10.1007/s11270-016-2891-2>.
- Matić, N., Miklavčić, I., Maldini, K., Tomas, D., Cuculić, V., Cardellini, C., Frančičković- Bilinski, S., 2013.** Geochemical and isotopic characteristics of karstic springs in coastal mountains (Southern Croatia). *J. Geochemical Explor.* 132, 90–110. doi:10.1016/j.gexplo.2013.06.007
- Mattauer, M. 1958.** Etude géologique de l’Ouarsenis oriental (Algérie). *Publication de Service des Cartes Géologiques d’Algérie, Algérie, 534.*
- Mazlan Hashim, Samsudin Ahmad, Mohd Amin Md Johari, Amin Beiranvand Pour., 2013.** Automatic lineament extraction in a heavily vegetated region using Landsat Enhanced Thematic Mapper (ETM+) imagery. *Advances in Space Research, Volume 51* <https://doi.org/10.1016/j.asr.2012.10.004>.
- McCarthy, K.T., Pichler, T., Price, R.E., 2005.** Geochemistry of champagne Hot Springs shallow hydrothermal vent field and associated sediments, Dominica, lesser Antilles. *Chem. Geol.* 224, 55–68.
- Megartsi, M., 1985.** Le volcanisme mio-plio-quadernaire de l’Oranie nord-occidentale (Algerie). *Thèse Doctorat d’Etat, USTHB (Alger), 296p.*
- Meghraoui M. 1982.** Etude néotectonique de la région nord-est d’El Asnam: Relation avec le séisme du 10 Octobre 1980. *Thèse de 3 ° cycle, Univ. Paris VII, 210 pp.*
- Mehlhorn, J., Beulig, F., Küsel, K., Planer-Friedrich, B. 2014.** Carbon dioxide metal(oid) mobilisation in a mofette. *Chem. Geol.* 382, 54–66. <https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2014.05.027>.
- Mehta. N and Sullivan F. O. 2015.** in Food, Energy, and Water, 1st end., S. Ahuja, Ed. Boston: *Elsevier, 2015, pp. 217–241.*
- Meng, S.X. and Maynard, J.B. 2001.** Use of statistical analysis to formulate conceptual models of geochemical behavior: water chemical data from the Botucatu aquifer in São Paulo state, *Brazil Jour. Hydrol., v.250, pp.78- 97.* doi: 10.1016/S0022-1694(01)00423-1
- Merrill Eisenbud and Thomas Gesell. 1997.** Environmental Radioactivity from Natural, Industrial & Military Sources: From Natural, *Industrial and Military Sources: Elsevier, 1997.*
- Michard. G., 1990.** La composition chimique des eaux thermominérales et géothermales. *Hydrogéologie, 4, 253-266.*
- Mirhosseini, S.M., Negarestani, A., Moattar, F., Karbassi, A.R., 2015.** Water chemistry and radon concentrations of thermal springs in Bastak area, south of Persia. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry.* 304, 1085–1092. <https://doi.org/10.1007/s10967-014-3919-y>

- Moise, T., Starinsky, A., Katz, A., Kolodny, Y.**, 2000. Ra isotopes and Rn in brines and ground waters of the Jordan–Dead Sea Rift Valley: enrichment, retardation, and mixing. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 64, 2371–2388
- Moore W.S.**, 2008. Fifteen years experience in measuring ^{224}Ra and ^{223}Ra by delayed-coincidence counting. *Marine Chemistry* 109, 188–197.
- Moore, D.G., and M.R. Scott.** 1986. Behavior of Ra-226 in the Mississippi River mixing zone. *Journal of Geophysical Research: Oceans* 91(12): 14317–14329
- Moore, W.S., Arnold, R.**, 1996. Measurement of ^{223}Ra and ^{224}Ra in coastal waters using adelayed coincidence counter. *J. Geophys. Res.* 101, 1321–1329.
- Moore, W.S., Reid, D.F.**, 1973. Extraction of radium from natural waters using manga- nese-impregnated acrylic fibers. *J. Geophys. Res.* 78 (36), 8880–8886.
- Moreno, V., Bach, J., Zarroca, M., Font, L., Roqué, C., Linares, R.**, 2018. Characterization of radon levels in soil and groundwater in the North Maladeta Fault area (Central Pyrenees) and their effects on indoor radon concentration in a thermal spa. *Journal of Environmental Radioactivity*, 189(March), 1–13. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2018.03.001>
- Mouassa, S., Moulla, A. S., Tahar, A. B., Teffahi, M., & Zaagane, M.** 2020. Geochemical and isotopic characterization of groundwater in the alluvial aquifer of Guelma (north-eastern Algeria). *Arab J Geosci* 13, 218.
- Murad, A.A., Garamoon, H., Hussein, S., Al-Nuaimi, H.S.**, 2011. Hydrogeochemical characterization and isotope investigations of a carbonate aquifer of the northern part of the United Arab Emirates. *J. Asian Earth Sci.* 40, 213–225
- Nagabhushana, S.R., Sunilkumar, Suresh, S., Sannappa, J., Srinivasa, E.**, 2020. Study on activity of radium, radon and physicochemical parameters in ground water and their health hazards around Tumkur industrial area. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 323(3), 1393–1403. <https://doi.org/10.1007/s10967-019-06985-w>
- National Research Council**, 2006. Health Risks from Exposure to Low Levels of Ionizing Radi- ation, BERI VII Phase 2. *The National Academies Press, Washington DC.* <https://www.nap.edu/catalog/11340/health-risks-from-exposure-to-low-levels-of-ionizing-radiation>.
- Neurdin-Trescartes J.** 1992. Le remplissage sédimentaire du bassin néogène du Chélif, modèle de référence de bassins intramontagneux. *Thèse de Doctorat d'État, université de Pau et Pays de l'Adour, France*, 605 p
- Nguyen, D.C., Nowak, J.**, 2021. Natural Radioactivity in Thermal Waters: A Case Study from Poland. *Energies*, 14, 541. <https://doi.org/10.3390/en14030541>
- Nieva, D. & Nieva, R.**, 1987. Developments in geothermal energy in Mexico—part twelve. A cationic geothermometer for prospecting of geothermal resources. *Heat Recovery Systems and CHP* 7: 243–258
- Nugraha, E.D., Hosoda, M., Mellawati, J., Untara, U., Rosianna, I., Tamakuma, Y., Tokonami, S.**, 2021. Radon Activity Concentrations in Natural Hot Spring Water: Dose Assessment and Health Perspective. *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 18(3), 920.

- Oden, J. H. & Szabo, Z.**, 2016. Arsenic and radionuclide occurrence and relation to geochemistry in groundwater of the Gulf Coast Aquifer System in Houston, Texas, 2007–11. *Sci. Investig. Rep.* <https://doi.org/10.3133/sir20155071>.
- Onishchenko, A., Zhukovsky, M., Veselinovic, N., Zunic, Z.S.**, 2010. Radium-226 concentration in spring water sampled in high radon regions. *Appl. Radiat. Isot.* 825–827.
- Óskarsson, F., St. Ásgeirsdóttir.**, 2017. Radon in Icelandic Cold Groundwater and Low-Temperature Geothermal Water. *Procedia Earth and Planetary Science*, 17, 229–232. <https://doi.org/10.1016/j.proeps.2016.12.078>
- Osmond J.K. and Cowart J.B.** 1982. Groundwater. In Uranium-series Disequilibrium (eds. M. Ivanovich and R.S. Harmon), ISBN 0-19- 854423-5, Clarendon Press, Oxford.
- Osmond, J.K., Cowart, J.B., 1976.** The theory and uses of natural uranium isotopic variations in hydrology. *Atomic Energy Review* 144, S. 621-677
- Osmond, J.K., Cowart, J.B., Ivanovich, M.**, 1983. Uranium isotopic disequilibrium in groundwater as an indicator of anomalies. *Int. J. Appl. Radiat. Isot. Vol. 4, No. 1, S. 283-308.*
- Parkhurst, D.L., Appelo, C.**, 1999. User's Guide to PHREEQC (Version 2): A Computer Program for Speciation, Batch-Reaction, One-Dimensional Transport, and Inverse Geochemical Calculations. U.S. Geological Survey, *Water-Resource Investigations. Report 99-4259.*
- Pasvanoglu, S.**, 2020. Geochemistry and conceptual model of thermal waters from ercis, - zilan valley, eastern Turkey. *Geothermics* 86, 101803. <https://doi.org/10.1016/j.geothermics.2020.101803>.
- Patil, V.T., Patil, P.R.** 2010. Physicochemical analysis of selected groundwater samples of Amalner town in Jalgaon District, Maharashtra, India. *J. Chem.* 7, 111e116. <http://dx.doi.org/10.1155/2010/820796>.
- Patterson, L.J., Sturchio, N.C., Kennedy, B.M., van Soest, M.C., Sultan, M.I., Lu, Z.T., Lehmann, B.E., Purtschert, R., El Kaliouby, B., Dawood, Y., Abdallah, A.M.**, 2005. Cosmogenic, radiogenic, and stable isotopic constraints on groundwater residence time in the Nubian Aquifer, Western Desert of Egypt. *Geochem. Geophys. Geosyst.* 6 (1), Q01005.
- Paul, R., Brindha, K., Gowrisankar, G., Tan, M.L., Singh, M.K.**, 2019. Identification of hydrogeochemical processes controlling groundwater quality in Tripura, Northeast India using evaluation indices, GIS, and multivariate statistical methods. *Environ. Earth Sci.* 78, 470. <https://doi.org/10.1007/s12665-019-8479-6>.
- Perrodon, A.**, 1957. Etude géologique des bassins néogènes sublittoraux de l'Algérie occidentale. *Bulletin du Service de la Carte géologique d'Algérie* 12: 1-328.
- Petersen, J. O., Deschamps, P., Hamelin, B., Fourré, E., Gonçalves, J., Zouari, K., Guendouz, A., Michelot, J. L., Massault, M., Dapoigny, A., & Team, A.** 2018. Groundwater flowpaths and residence times inferred by ¹⁴C, ³⁶Cl and ⁴He isotopes in the Continental Intercalaire aquifer (North-Western Africa). *Journal of Hydrology*, 560, 11–23. <https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2018.03.003>
- Phillips, F.M.**, 2013. Chlorine-36 dating of old groundwater. In: Isotope Methods for Dating Old Groundwater. IAEA (International Atomic Energy Agency), Vienna, pp. 125–152. STI/PUB/1587.

- Piper, A.M.**, 1944. A graphic procedure in the geochemical interpretation of water-analyses. *Trans AGU* 25:914.
- Pires, R. F., & Moilton R Franco Jr.** (2012). Fluid Phase Equilibria Solubility of salicylic acid in water + salt (NaCl , KCl , NaBr , Na₂ SO₄ and K₂ SO₄) at. *Fluid Phase Equilibria*, 330, 48–51. <https://doi.org/10.1016/j.fluid.2012.06.024>
- Pitaud G.** 1973. Étude hydrogéologique pour la mise en valeur de la vallée de l'oued Saïda (rapport de synthèse), *division ressource hydrique*.
- Porcelli, D.**, 2008. Investigating Groundwater Processes Using U- and Th-Series Nuclides, in: Krishnaswami, S., Cochran, J.K. (Eds.), U-Th Series Nuclides in Aquatic Systems. *Elsevier*, pp. 105–153. doi:10.1016/S1569-4860(07)00004-6
- Porcelli, D., Kim, C.-K., Martin, P., Moore, W.S., Phaneuf, M.**, 2014. Properties of Radium, in: IAEA (Ed.), Environmental Behaviour of Radium: *Revised Edition*. IAEA, Vienna, pp. 6–32.
- Porcelli, D., Swarzenski, P.W.**, 2003. The behavior of U- and Th-series nuclides in groundwater. In: Bourdon, B., Henderson, G.M., Lundstrom, C.C., Turner, S.P. (Eds.), Uranium-Series Geochemistry. *Rev. Mineral. Geochem.*, vol. 52. *Mineralogical Society of America*, pp. 317–361.
- Pressyanov D.S., Guelev M.G., and Sharkov B.G.** 1995. Radon and radon progeny outdoors in a valley of enhanced natural radioactivity. *Atmospheric Environment*, vol. 29, pp. 3433-3439.
- Przylibski, T.A.**, 2000. Estimating the radon emanation coefficient from crystalline rocks into groundwater. *Applied Radiation and Isotopes* 53, 473–479.
- Pugliese, M., Quarto, M., Roca, V.**, 2013. Radon concentrations in air and water in the thermal spas of Ischia Island. *Indoor and Built Environment*. 2014;23(6):823-827. <https://doi.org/10.1177/1420326X13480053>
- Puigdomenech, I. and Bruno, J.** 1988. Modelling uranium solubilities in aqueous solutions: validation of a thermodynamic data base for the EQ3/6 geochemical codes. *Swedish Nucl. Fuel Waste Manag. Co., Box 5864, S-102 48 Stockholm, SKB Techn. Rep. 88-21*, 63 pp.
- Qian, K., Sun, H., Li, J., & Xie, X.** 2023. Applied Geochemistry Strontium isotopes as tracers for water-rocks interactions of groundwater to delineate iodine enrichment in aquifer of Datong Basin , northern China. *Applied Geochemistry*, 158(August), 105783. <https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2023.105783>
- Rajaomahefasoa, R.E., Voltaggio, M., Rakotomandrindra, P.F., Ratsimbazafy, J.B., Spadoni, M., Rakoto, H.A.**, 2019. Radium isotopes for groundwater age and sustainability in the highland of Antananarivo, Madagascar. *Journal of African Earth Sciences*, 156. 94–107. <https://doi.org/10.1016/j.jafrearsci.2019.05.011>
- Rao, W., Jin, K., Jiang, S., Tan, H., Han, L., & Tang, Q.** 2015. Chemical and strontium isotopic characteristics of shallow groundwater in the Ordos Desert Plateau, North China: implications for the dissolved Sr source and water–rock interactions. *Geochemistry*, 75(3), 365-374.
- Remy, M.L., Lemaitre, N.**, 1990. Eaux minérales et radioactivité. *Hydrogeol. Inz. Geol.* 4, 267–278.

- Reynolds, B.C., Wasserburg, G.J., Baskaran, M.,** 2003. The transport of U- and Th-series nuclides in sandy confined aquifers. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 67(11), 1955–1972. [https://doi.org/10.1016/S0016-7037\(02\)01341-8](https://doi.org/10.1016/S0016-7037(02)01341-8)
- Rihs, S., Condomines, M.,** 2002. An improved method for Ra isotope (²²⁶Ra, ²²⁸Ra, ²²⁴Ra) measurements by gamma spectrometry in natural waters: application to CO₂-rich thermal waters from the French Massif Central. *Chem. Geol.* 182, 409–421. doi:10.1016/s0009-2541(01)00332-1
- Rihs, S., Condomines, M., Sigmarsson, O.,** 2000. U, Ra and Ba incorporation during precipitation of hydrothermal carbonates: Implications for ²²⁶Ra-Ba dating of impure travertines. *Geochim. Cosmochim. Acta* 64, 661–671. doi:10.1016/S0016-7037(99)00344-0.
- Roba, C. A., Niță, D., Cosma, C., Codrea, V., Olah, Ș.,** 2012. Correlations between radium and radon occurrence and hydrogeochemical features for various geothermal aquifers in Northwestern Romania. *Geothermics*, 42, 32–46. <https://doi.org/10.1016/j.geothermics.2011.12.001>
- Rodellas, V., Garcia-Orellana, J., Trezzi, G., Masqué, P., Stieglitz, T.C., Bokuniewicz, H., Cochran J.K., Berdalet, E.,** 2017. Using the radium quartet to quantify submarine groundwater discharge and porewater exchange. *Geochim. Cosmochim. Acta* 196, 58–73. <https://doi.org/10.1016/j.gca.2016.09.016>.
- Ródenas, C., Gómez, J., Soto, J., Maraver, F.,** 2008. Natural radioactivity of spring water used as spas in Spain. *J Radioanal Nucl Chem* 277(3):625–630. <https://doi.org/10.1007/s10967-007-7158-3>
- Rosholt, J.N.,** 1982. Mobilisation and weathering. In: Ivanovich, M., Harmon, R.S. (Hrsg.) Uranium-series Disequilibrium: Application to Earth, Marine and Environmental Sciences. *Clarendon Press, Oxford*, S. 167-180.
- Rubin, K.H. and Macdougall, J.D.** 1988. ²²⁶Ra-excesses in mid-ocean ridge basalts and mantle melting. *Nature* 335: 158-161.
- Rutherford. E., Soddy. F. 1902.** The Cause and Nature of Radioactivity I, II. *Philosophical Magazine* IV, 370–96, 569–85
- Saç, M.M, Aydemir S, İçhedef, M., Kumru, M., Bolca, M., Ozen, F.,** 2014. Natural radioactivity levels of geothermal waters and their influence on soil and agricultural activities. *Radiation Protection Dosimetry*. 158(2), 148–155. doi:10.1093/rpd/nct220
- Saibi, H.,** 2009. Geothermal resources in Algeria. *Renew Sust Energ Rev* 13(9):2544–2552.
- Saibi, H.,** 2015. Geothermal resources in Algeria. *Proceedings of the WGC, Australia-New Zealand* pages: 31–34.
- Salih, I., Bäckström, M., Karlsson, S., Lund, E., Pettersson, H.B.L.,** 2004. Impact of fluoride and other aquatic parameters on radon concentration in natural waters. *Appl. Radiat. Isot.* 60, 99–104. doi:10.1016/j.apradiso.2003.10.007
- Santoni, S., Garel, E., Mayer, A., Radakovitch, O., Travi, Y., Huneau, F.,** 2020. Detection and quantification of low submarine groundwater discharge flows by radionuclides to support conceptual hydrogeological model of porous aquifers. *Journal of Hydrology*, 583 (November 2019), 124606. <https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2020.124606>

- Savelli, C.**, 2002. Time-space distribution of magmatic activity in the western Mediterranean and peripheral orogens during the past 30 Ma (a stimulus to geodynamic considerations). *J. Geodyn.* 34 (1), 99–126.
- Schoeller, H.**, 1963. La Classification Géochemique des eaux., *IASH publication., General Assembly of Berkeley: 16–24*
- Schubert M., A. Schmidt, A. Paschke, A. Lopez, and M. Balcázar**, 2008. "In situ determination of radon in surface water bodies by means of a hydrophobic membrane tubing," *Radiation Measurements*, vol. 43, pp. 111-120
- Schubert M., Freyer K., Treutler H.C., Weiss H.**, 2001. Using soil gas radon as an indicator for ground contamination by non-aqueous phase-liquids. *J. Soils Sed. 1*, 217e222
- Schwarcz H. P., Gascoyne M. and Ford D. C.** 1982. Uranium-series disequilibrium studies of granitic rocks. *Chem. Geol.* 36,87-102.
- Shah, M., Sircar, A., Varsada, R., Vaishnani, S., Savaliya, U., Faldu, M., Vaidya, D., Bhattacharya, P.**, 2019. Assessment of geothermal water quality for industrial and irrigation purposes in the Unai geothermal field, Gujarat, India. *Groundwater Sustain. Dev.* 8, 59–68. <https://doi.org/10.1016/j.gsd.2018.08.006>. February 2018.
- Sharma, S.** 1996. Applied Multivariate Techniques. *John Wiley and Sons Inc., New York*, 512 p.
- Shaw, T.J., Moore, W.S.**, 2002. Analysis of ²²⁷Ac in seawater by delayed coincidence counting. *Marine Chemistry* 78, 197-203.
- Sherif, M.I., Lin, J., Poghosyan.A., Abouelmagd. A., Sultan, M.I., Sturchio, N.C.**, 2018. Geological and hydrogeochemical controls on radium isotopes in groundwater of the Sinai Peninsula, Egypt. *Science of the Total Environment* 613–614. 877–885. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2017.09.129>
- Sherif, M.I., Sturchio, N.C.**, 2021. Elevated radium levels in Nubian Aquifer groundwater of Northeastern Africa. *Scientific Reports*, 11(1), 1–12. <https://doi.org/10.1038/s41598-020-80160-0>
- Sracek, O., Bhattacharya, P., Jacks, G., Gustafsson, J.P., Brömssen von, M.**, 2004. Behavior of arsenic and geochemical modeling of arsenic enrichment in aqueous environments. *Appl. Geoch.* 19 (2), 169–180. <https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2003.09.005>.
- Sracek, O., Rahobisoa, J. J., Trubač, J., Buzek, F., Andriamamonjy, S. A., & Rabeloson, R. A.** 2019. Geochemistry of thermal waters and arsenic enrichment at Antsirabe, Central Highlands of Madagascar. *Journal of Hydrology*, 577(July 2020), 123895. <https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2019.06.067>
- Stackelberg, P. E., Szabo, Z., Jurgens, B.C.**, 2018. Applied Geochemistry Radium mobility and the age of groundwater in public-drinking-water supplies from the Cambrian-Ordovician aquifer system, north-central USA. *Applied Geochemistry*, 89(October 2017), 34–48. <https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2017.11.002>
- Sturchio, N. C., Bohlke, J. K., & Markun, F. J.** 1993. Radium isotope geochemistry of thermal waters, Yellowstone National Park, Wyoming, USA. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 57(6), 1203–1214. [https://doi.org/10.1016/0016-7037\(93\)90057-4](https://doi.org/10.1016/0016-7037(93)90057-4)

- Sturchio, N.C., Banner, J.L., Binz, C.M., Heraty, L.B., Musgrove, M.,** 2001. Radium geochemistry of groundwaters in Paleozoic carbonate aquifers, midcontinent, USA. *Applied Geochemistry*, 16, 109–22.
- Sturchio, N.C., Bohlke, J.K., Markun, F.J.,** 1993. Radium isotope geochemistry of thermal waters, Yellowstone National Park, Wyoming, USA. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 57, 1203.
- Subba Rao, N., Das, R., Gugulothu, R.,** 2022. Understanding the factors contributing to groundwater salinity in the coastal region of Andhra Pradesh, India. *Journal of Contaminant Hydrology* 250, 104053. <https://doi.org/10.1016/j.jconhyd.2022.104053>.
- Sukanya, S., Noble, J., & Joseph, S.** 2021. Factors controlling the distribution of radon (²²²Rn) in groundwater of a tropical mountainous river basin in southwest India. *Chemosphere*, 263, 128096. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2020.128096>
- Sultan, M., Sturchio, N.C., Saleh Alesfry, S., et al.,** 2019. Assessment of age, origin, and sustainability of fossil aquifers: A geochemical and remote sensing-based approach. *J. Hydrol.*, 576, 325-341
- Sun, H.B., Semkow, T.M.,** 1998. Mobilization of thorium, radium and radon radionuclides in ground water by successive alpha-recoils. *J. Hydrol.* 205 (1–2), 126–136.
- Surbeck, H.,** 2005. Dissolved gases as natural tracers in karst hydrogeology; radon and beyond, in: Multidisciplinary Approach to Karstwater Protection Strategy, *Unesco Course, Budapest, Hungary*. pp. 1–38.
- Swarzenski, P.W., Reich, C., Kroeger, K.D., Baskaran, M.,** 2007. Ra and Rn isotopes as natural tracers of submarine groundwater discharge in Tampa Bay, Florida. *Mar. Chem.* 104, 69–84. doi:10.1016/j.marchem.2006.08.001
- Szabo, Z., de Paul, V.T., Kraemer, T.F., Parsa, B.,** 2005. Occurrence of radium-224, radium- 226, and radium-228 in water of the unconfined Kirkwood-Cohansey aquifer system, southern New Jersey. *US Geological Survey, Scientific Investigations Report 2004- 5224*
- Szabo, Z., DePaul, V.T., Fischer, J.M., Kraemer, T.F., Jacobsen, E.,** 2012. Occurrence and geochemistry of radium in water from principal drinking-water aquifer systems of the United States. *Appl. Geochemistry* 27, 729–752. doi:10.1016/j.apgeochem.2011.11.002.
- Tabar, E., Yakut. H.,** 2014. Radon measurements in water samples from the thermal springs of Yalova basin , Turkey. *J Radioanal Nucl Chem*, 311–319. <https://doi.org/10.1007/s10967-013-2845-8>
- Takriti, S., Jubeli, Y.,** 2003. Characterization and disequilibrium cases of radioelements in some Syrian hot waters. *Environ Geol* 44:78–84
- Tanaka, T.,** 1988. Distribution of arsenic in the natural environment with emphasis on rocks and soils. *Applied Organometallic Chemistry* 2, 283-295
- Tarki M, Dassi L, Jedoui Y.,** 2012. Groundwater composition and re- charge origin in the shallow aquifer of the Djerid oases, southern Tunisia: implications of return flow. *Hydrol Sci J* 57(4):790–804. <https://doi.org/10.1080/02626667.2012.681783>
- Telahigue, F., Agoubi, B., Souid, F., Kharroubi, A.,** 2018. Assessment of seawater intrusion in an arid coastal aquifer, south-eastern Tunisia, using multivariate statistical analysis and chloride mass balance. *Phys. Chem. Earth Parts A/B/C* 106, 37–46. <https://doi.org/10.1016/j.pce.2018.05.001>

- Thomas, G.**, 1985. Geodynamique d'un bassin intramontagneux; le bassin du bas Cheliff occidental (Algérie) durant le Miopliocène, *Ph.D. Thesis, Université de Pau et Pays de l'Adour, France*.
- Thompson, W. G., Spiegelman, M. W., Goldstein, S. L., & Speed, R. C.** 2003. An open-system model for U-series age determinations of fossil corals. *Earth and Planetary Science Letters*, 210(1-2), 365-381.
- Todorovic, N., Forkapic, S., Bikit, I., Mrdja, D., Veskovic, M., Todorovic, S.**, 2011. Monitoring for exposures to Tenorm sources in Vojvodina region. *Radiation Protection Dosimetry* 144 (1e4), 655e658.
- Tomita, J., Zhang, J., Yamamoto, M.**, 2014. Radium isotopes (^{226}Ra and ^{228}Ra) in Na-Cl type groundwaters from Tohoku District (Aomori, Akita and Yamagata Prefectures) in Japan. *J. Environ. Radioact.* 137, 204–212. doi:10.1016/j.jenvrad.2014.07.021
- Tonani, F.B.**, 1980. Some Remarks on the Application of Geochemical Techniques in geothermal exploration. In: Strub, A.S. & Ungemach, P. (eds): *Advances in European Geothermal Research. Springer Netherlands (Dordrecht): 428–443*.
- Torres-martínez, J. A., Mora, A., Knappett, P. S. K., Ornelas-soto, N., & Mahlkecht, J.** 2020. Tracking nitrate and sulfate sources in groundwater of an urbanized valley using a multi-tracer approach combined with a Bayesian isotope mixing model. *Water Research*, 182, 115962. <https://doi.org/10.1016/j.watres.2020.115962>
- Toulhoat, P., et Beaucaire, C.** 1987. Analyses of lead and uranium isotopes in groundwaters, application to the prospection of concealed uranium deposits in the Lodève area (southern French Massif Central). *Symposium international sur les mécanismes de concentration de l'uranium dans l'environnement géologique, Nancy 5-10 Octobre 1985, à paraître dans "Uranium"*.
- Treutler, H., G. Just, M. Schubert, and H. Weiß.** 2007. Radon as a tracer to determine the mean residence times of groundwater in decontamination reactors. *Journal of radioanalytical and nuclear chemistry*, vol. 272, pp. 583-588, 2007.
- Tricca, A., Wasserburg, G.J., Porcelli, D., Baskaran, M.**, 2001. The transport of U- and Th-series nuclides in a sandy unconfined aquifer. *Geochim. Cosmochim. Acta* 65, 1187–1210.
- Truesdell, A.H.**, 1975. Summary of section III geochemical techniques in exploration. *Second United Nations symposium on the development and use of geothermal resources. San Francisco, CA. Vol. 1, pp. liii–lxiii. Washington, DC: US Government Printing Office*.
- Turekian, K.K., Cochran, J.K.**, 1986. Flow rates and reaction rates in the Galapagos Rise spreading center hydrothermal system as inferred from $\text{Ra-}^{228}/\text{Ra-}^{226}$ in vesicomidclam shells. *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, 83: 6241-6244.
- U.S. Environmental Protection Agency.**, 2009. National Primary Drinking Water Standards, Radionuclides. <https://www.epa.gov/ground-water-and-drinkingwater/national-primary-drinking-water-regulations>. *Radionuclides. accessed 02 April 2020*.
- Underwood, E.C., Ferguson, G.A., Betcher, R., Phipps, G.**, 2009. Elevated Ba concentrations in a sandstone aquifer. *J. Hydrol.* 376, 126–131.

- Valère-Carin Jofack Sokeng, Koffi Fernand Kouamé, Marc Youan, Mahaman Bachir Saley**, 2014 : Extraction automatique des linéaments sur les images satellitaires par réseaux de neurones : contribution à la cartographie structurale du socle précambrien de la région de Bondoukou (Nord-Est de la Côte d'Ivoire). *Revue Scientifique Internationale de Géomatique*, 1, 4-17.
- Veeh, H.H.**, 1967. Disposition of Uranium from the ocean. *Earth Planet. Sci. Lett.* 3, S. 145-150
- Vengosh, A., Coyte, R. M., Podgorski, J., & Johnson, T. M.** 2022. A critical review on the occurrence and distribution of the uranium- and thorium-decay nuclides and their effect on the quality of groundwater. *Science of the Total Environment*, 808, 151914. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2021.151914>
- Vengosh, A., Hirschfeld, D., Vinson, D., Dwyer, G., Raanan, H., Rimawi, O., Al-Zoubi, A., Akkawi, E., Marie, A., Haquin, G., Zaarur, S., Ganor, J.**, 2009. High naturally occurring radioactivity in fossil groundwater from the Middle East. *Environ. Sci. Technol.* 43, 1769–1775.
- Verdeil, P.**, 1982. Algerian thermalism in its geostructural setting how hydrogeology has helped in the elucidation of Algeria's deep seated structure. *J Hydrol* 56:107–117.
- Verma, M.P.**, 2000. Limitations in Applying Silica Geothermometers from Geothermal Reservoir Evaluation, *Proceedings, the 25th Workshop on Geothermal Reservoir Engineering, Stanford University, Stanford, CA, SGP-TR-165*.
- Vila J. M.** 1980. - La chaîne alpine d'Algérie orientale et des confins algéro-tunisiens. *Thèse ès-Sciences, Paris VI, 2 tomes, 665 p*
- Vinson, D.S., Lundy, J.R., Dwyer, G.S., Vengosh, A.**, 2012. Implications of carbonate-like geochemical signatures in a sandstone aquifer: Radium and strontium isotopes in the Cambrian Jordan aquifer (Minnesota, USA). *Chem. Geol.* 334, 280–294. [doi:10.1016/j.chemgeo.2012.10.030](https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2012.10.030)
- Vinson, D.S., Tagma, T., Bouchaou, L., Dwyer, G.S., Warner, N.R.**, 2013. Occurrence and mobilization of radium in fresh to saline coastal groundwater inferred from geochemical and isotopic tracers (Sr, S, O, H, Ra, Rn). *Applied Geochemistry*, 38, 161–175. <https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2013.09.004>
- Vinson, D.S., Vengosh, A., Hirschfeld, D., Dwyer, G.S.**, 2009. Relationships between radium and radon occurrence and hydrochemistry in fresh groundwater from fractured crystalline rocks, North Carolina (USA). *Chemical Geology*, 260, 159–71.
- Voronov, A. N.** 2004. Radon-rich waters in Russia. *Environmental Geology* 46(5), 630
- Wang, S., Ye, C., Liu, J., Lin, P., Liu, K., & Dong, P.**, 2017. Natural radioactivity of geothermal water in Beijing, China. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 123, 1547–1555. <https://doi.org/10.1007/s10967-017-5541-2>
- Wang, Y., Guo, Q., Su, C., & Ma, T.** 2006. Strontium isotope characterization and major ion geochemistry of karst water flow, Shentou, northern China. *Journal of Hydrology*, 328(3-4), 592-603.
- Ward, Jr. J.H.** 1963. Hierarchical grouping to optimize an objective function *Jour. Amer. Statis. Assoc.*, v.58, pp.236-244.

- White, D.E.**, 1963. Saline Waters of Sedimentary Rocks. Abstract. *AAPG Bulletin* 47.
- Wildi W.** 1983. La chaîne tello-rifaine (Algérie-Maroc-Tunisie): structure, stratigraphie et évolution du Trias au Miocène. *Revue de Géologie Dynamique et Géographie Physique*, pp 201-298.
- World Health Organization.**, 2006. Cancer control: knowledge into action: WHO guide for effective programmes, vol 2. *World Health Organization, Geneva*.
- World Health Organization.**, 2011. Guidelines for Safe Drinking-Water Quality; *Fourth Edition 2011*. http://apps.who.int/iris/bitstream/10665/44584/1/9789241548151_eng.
- Wright, R.J.**, 1972. Thorium: Element and geochemistry. Dans : Fairbridge, R.W. (Ed.), *Encyclopedia of geochemistry and environmental sciences. Van Nostrand Reinhold, New York*, pp1183-1189.
- Xie, X., Wang, Y., Ellis, A., Su, C., Li, J., Li, M., & Duan, M.** 2013. Delineation of groundwater flow paths using hydrochemical and strontium isotope composition: a case study in high arsenic aquifer systems of the Datong basin, northern China. *Journal of Hydrology*, 476, 87-96.
- Yang, P., Luo, D., Hong, A., Ham, B., Xie, S., Ming, X., Wang, Z., & Pang, Z.** 2019. Hydrogeochemistry and geothermometry of the carbonate-evaporite aquifers controlled by deep-seated faults using major ions and environmental isotopes. *Journal of Hydrology*, 579(May), 124116. <https://doi.org/10.1016/j.jhydrol.2019.124116>
- Yarar, Z., Tas, C., Kumru, M. N., Bolca, M.**, 2015. Ra and ²²⁶Ra in geothermal waters of Bayındır-Zmir (Turkey). *Environ Earth Sci*, 6943–6949. <https://doi.org/10.1007/s12665-015-4701-3>
- Yasin, D., Kargin, M.**, 2021. Hydrogeochemical and isotopic characteristics of water resources in Çubuk-Meliksah (Ankara/Turkey). *Environ. Earth Sci.* 80 (16), 1–14. <https://doi.org/10.1007/s12665-021-09813-1>.
- Zapeczka, O.S., Szabo, Z.**, 1988. Natural radioactivity in groundwater- A review, in: USGS (Ed.), *National Water Summary 1986; Hydrologic Events and Ground-Water Quality. USGS, Washington*, pp. 50–57.
- Zeroual, A., Assani, A.A., Meddi, M. and Alkama, R.** 2018. Assessment of climate change in Algeria from 1951 to 2098 using the Köppen–Geiger climate classification scheme. *Clim Dyn* 52, 227–243. <https://doi.org/10.1007/s00382-018-4128-0>.
- Zhang, W., Wang, G., Xing, L., Li, T., & Zhao, J.** 2019. Geochemical response of deep geothermal processes in the Litang region, Western Sichuan. *Energy Exploration and Exploitation*, 37(2), 626–645. <https://doi.org/10.1177/0144598718812550>
- Zemour, Y., Mebrouk N., Mayer, A., Mekebret I., Sherif MI.** 2023. Hydrochemical and geological controls on dissolved radium and radon in northwestern Algeria hydrothermal groundwaters. *Chemosphere* 313:137573. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2022.137573>
- Zukin, G., Hammond, E., Ku, T., Elders, A.**, 1987. Uranium-thorium series radionuclides in brines and reservoir rocks from two deep geothermal boreholes in the Salton Sea Geothermal Field, southeastern California. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 51, 2719–2731.

Liste des Figures	Pages
Fig. 1. Schéma structural des chaines alpines de la Méditerranée occidentale.....	6
Fig. 2. Grands traits géographiques de la chaîne alpine du nord-africain.....	10
Fig. 3. Situation géographique de la région d'étude.....	13
Fig. 4. Carte géologique du Nord-Ouest algérien avec la localisation des sources thermales de la région.....	16
Fig. 5. Localisation et limite de bassin de la Tafna.....	18
Fig. 6. Principales caractéristiques de la structure géologique de l'Algérie occidentale	26
Fig. 7. Esquisse tectonique de la région d'étude	27
Fig. 8. Carte des principaux linéaments cartographies du nord-ouest Algérien.....	29
Fig. 9. Relation linéaments-zone des sources thermales.....	30
Fig. 10. Relation densité linéamentaire-sources thermales.....	31
Fig. 11. Relation Faille-sources thermales.....	32
Fig. 12. Rosace des directions des fractures dans le nord-ouest algérien : a-linéaments, b-faille...	33
Fig. 13. Les quatre bandes thermo-sismiques du nord-africain.....	34
Fig. 14. Relation sismicité- sources thermales.....	35
Fig. 15. Carte Hydrogéologique et types d'aquifères du nord-ouest algérien.....	37
Fig. 16. Répartition des sources thermales dans le nord-ouest algérien.....	39
Fig. 17. Carte des températures thermales du nord-ouest algérien.....	40
Fig. 18. Schéma synthétique expliquant le système hydrothermal du Hammam Bouhadjar	42
Fig. 19. Coupe géologique de la source thermale Ain Franine.....	42
Fig. 20. Coupe géologique de la source thermale Hammam Rabi (Saida).....	44
Fig. 21. Différentes classes des températures pour les sources hydrothermales étudiées	49
Fig. 22. Répartition des teneurs en Calcium.....	55
Fig. 23. Répartition des teneurs en Sodium en mg/l.....	56
Fig. 24. Répartition des teneurs en Chlorure en mg/l.....	58
Fig. 25. Répartition des teneurs en Sulfate en mg/l.....	59
Fig. 26. Les teneurs en éléments traces des eaux thermales du Nord-Ouest algérien.....	62
Fig. 27. Carte de répartitions des facies chimique des eaux thermales de la zone d'étude	63

Fig. 28. Représentation graphique des facies des eaux thermales de la région d'étude selon STABLER	64
Fig. 29. Diagramme de PIPER	65
Fig. 30. Diagramme ternaire Cl^- - SO_4^{2-} - HCO_3^-	66
Fig. 31. Matrice de corrélation des éléments chimiques analysés.....	67
Fig. 32. Dendrogramme de regroupement hiérarchique, Classification ascendante (Q-mode).....	69
Fig. 33. $\text{Na}^+ - \text{Cl}^-$	71
Fig. 34. $\text{Ca}^{+2}/\text{HCO}_3^- + \text{SO}_4^{2-}$ versus Na^+/Cl^-	72
Fig. 35. Ca^{2+} versus SO_4^{2-}	73
Fig. 36. Ca^{2+} versus HCO_3^-	74
Fig. 37. Na^+/Cl^- versus $\text{HCO}_3^-/\text{Ca}^{2+} + \text{SO}_4^{2-}$	75
Fig. 38. Relation entre Sr^{2+} et Ca^{+2} dans les eaux thermales	76
Fig. 39. Relation entre : Rb^+ et T°C (a), Li^+ et T°C (b), Rb^+ et K^+ (c), Li^+ et K^+ (d), As^{-3} et pH ...	78
Fig. 40. Indices de saturation des eaux étudiées	80
Fig. 41. IS des eaux des sources liées au littoral oranais (LI).....	81
Fig. 42. IS des eaux des sources liée au Bassin du Chélif (BC).....	81
Fig. 43. IS des eaux des sources du Bassin de la Tafna (BT).....	82
Fig. 44. IS des eaux des sources du domaine Tlemcenien (DMT).....	82
Fig. 45. Chaînes de désintégration radioactive naturelle du $^{238,235}\text{U}$ et ^{208}Th	87
Fig. 46. Désintégration de Radium-226.....	90
Fig. 47. Schéma des principaux processus impliqués dans la dissolution et la migration des radionucléides par : (a) recul alpha, (b) les interactions (c) précipitation et désintégration radioactive et (d) transport de radionucléides.....	99
Fig. 48. Schéma du RaDeCC, simplifié à un seul détecteur (ID1 ou ID2).....	109
Fig. 49. Photos de système d'analyse de la radioactivité dans les fibres Mn (nos échantillons) RaDeCC dans laboratoire LHA.....	110
Fig. 50. Désintégration de ^{224}Ra et ^{223}Ra et schéma de fonctionnement (temps de retard et durée d'ouverture des portails) des différents canaux (220, 219 et total) du RaDeCC.....	111
Fig. 51. Fibre-Mn en train d'être effilochée en laboratoire HLA.....	113
Fig. 52. Système pour déterminer les activités ^{222}Rn dans des échantillons d'eau thermique prélevés dans des bouteilles 2L avec un RAD7 dans laboratoire LHA d'Avignon.....	118

Fig. 53. Schéma du circuit fermé pour la détection de ^{226}Ra à partir de ^{222}Rn en utilisant le détecteur RAD.....	120
Fig. 54. Distribution et variation des activités de ^{223}Ra	127
Fig. 55. Distribution et variation des activités de ^{224}Ra	128
Fig. 56. Distribution et variation des activités de ^{222}Rn	129
Fig. 57. Distribution et variation des activités de ^{226}Ra	130
Fig. 58. Distribution et variation des activités de ^{228}Ra	131
Fig. 59. Teneurs en ^{226}Ra dans les eaux thermales dans le monde.....	133
Fig. 60. Teneurs en ^{222}Rn dans les eaux thermales dans le monde.....	134
Fig. 61. ^{222}Rn Vs ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{223}Ra et ^{224}Ra	138
Fig. 62. Teneur en ^{226}Ra et en ^{222}Rn	139
Fig. 63. Rapport $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$ par rapport à la température de l'eau.....	140
Fig. 64. Schéma expliquant les concentrations en radio-isotopes lors de l'ascension des eaux thermales et le mélange avec les eaux locales.....	140
Fig. 65. Variabilité de rapport $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$	142
Fig. 66. Relation et corrélation entre les quatre isotopes du Radium.....	146
Fig. 67. Ra et Rn vs température.....	151
Fig. 68. ^{224}Ra , ^{226}Ra et ^{228}Ra vs pH (a, b et c).....	152
Fig. 69. Les isotopes du radium vs la salinité de l'eau.....	154
Fig. 70. Les alcalino-terreux (Ca et Mg) vs ^{224}Ra (a et b), ^{226}Ra (c et d) et ^{228}Ra (e et f).....	156
Fig. 71. Relation entre l'occurrence du Radon et la sismicité au Nord-ouest algérien.....	159
Fig. 72. Variation des indices de la saturation de BaSO_4 , SrSO_4 et PbSO_4	164
Fig. 73. Relation SO_4^{2-} vs Ba (a) et SO_4^{2-} vs ^{226}Ra (b).....	166
Fig. 74. Relation entre les isotopes du Radium et le Baryum.....	167
Fig. 75. Les isotopes du Radium vs les indices de saturation BaSO_4	168
Fig. 76. Température des eaux thermales vs l'indice de saturation de la Barytine (BaSO_4).....	169
Fig. 77. Isotopes du Radium vs I.S. SrSO_4	170
Fig. 78. Les isotopes du Radium vs les indices de saturation PbSO_4	171
Fig. 79. Répartition des espèces de radium dans les eaux souterraines de la région du Piémont en Caroline du Nord, de l'aquifère de grès de Disi (Saq) dans le sud de la Jordanie et du Gujarat dans le nord-ouest de l'Inde.....	173
Fig. 80. Concentration maximale de ^{226}Ra et ^{222}Rn des eaux thermales.....	174
Fig. 81. Principaux facteurs contrôlant la migration et la distribution du Radium et du ^{222}Rn dans les aquifères hydrothermaux étudiés.....	180

Fig. 82. Modèle Schématique d'évolution des isotopes radioactifs du radium et radon dans les systèmes hydrothermaux du nord-ouest algérien181

Liste des Tableaux

Pages

Tableau. 1. Listing des sources hydrothermales étudiées.....24

Tableau. 2. Classification des eaux en fonction de la température.....48

Tableau. 3. La minéralisation des eaux thermales de Nord-Ouest d'Algérie.....50

Tableau. 4. Paramètres statistiques et variables descriptifs des sources hydrothermales.....52

Tableau. 5. Résultats d'analyses physico-chimiques des sources hydrothermales de l'Ouest algérien.....53

Tableau. 6. les concentrations des éléments traces dans les eaux thermales en ppb (ug/l).....61

Tableau 7. Unités de mesure des radioéléments et équivalence90

Tableau. 8. Radioactivité en Radium et Radon des eaux thermales de l'Ouest algérien69

Tableau. 9. Radioactivité en Radium et Radon des eaux hthermales de l'ouest algérien.....126

Tableau. 10. Les indices des saturations des minéraux sulfatés dans les eaux thermales de l'Ouest algérien.....164

Table des Matières

Avant-propos
Résumé
Abstract
ملخص

INTRODUCTION, PROBLÉMATIQUE GÉNÉRALE ET OBJECTIFS

I. Introduction.....	1
II. Problématique et objectif.....	2
III. Structure du manuscrit.....	4

PARTIE I

Exploration des systèmes hydrothermaux du Nord-Ouest algérien : perspectives géologiques, hydrogéologiques et hydrogéo-chimiques

CHAPITRE I

Synthèse géologique régionale et locale

I Éléments clés de la géologie de l’Afrique du Nord : aperçu et analyse.....	5
I.1 Domaine Tello-Rifain.....	5
I.2 Domaine atlasique.....	5
I.3 Domaine saharien.....	6
II. Géologie et structural de l’Algérie septentrional.....	6
II.1 Le domaine Tellien.....	6
A. <i>Tell septentrional</i>	7
B. <i>Tell meridional</i>	7
II.2 Le domaine présaharien.....	8
A. <i>Les hauts plateaux ou les hautes plaines</i>	8
B. <i>l’Atlas Saharien</i>	8
II.3 Structure de domaine des Maghrébides.....	8

II.3.1 La zone interne.....	9
II.3.2 Le domaine des Flyschs.....	9
II.3.3 Le domaine externe.....	10
II.3.4 L'avant pays des séries autochtones et para-autochtones dans l'ouest et le centre du pays.....	11
A. Les séries autochtones.....	11
B. Les séries para-autochtones.....	12
III Géographie, géologie et tectonique de l'Algérie nord occidental.....	12
III.1 Cadre géographique.....	12
III.2 Cadre géologique du nord-ouest algérien.....	13
III.2.1 Le littoral Oranais et les massifs littoraux.....	14
III.2.1.1 Lithostratigraphie des massifs littoraux.....	15
III.2.1.1.1 Primaire.....	15
III.2.1.1.2 Trias.....	15
III.2.1.1.3 Jurassique.....	15
III.2.1.1.4 Crétacé.....	17
III.2.2 Bassin du bas Chéelif.....	17
III.2.3 Le bassin de la Tafna et Monts de Tlemcen.....	17
III.2.3.1 Lithostratigraphie de bassin de la Tafna et Monts de Tlemcen.....	18
III.2.3.1.1. Le Paléozoïque.....	19
III.2.3.1.2. Le Mésozoïque	19
III.2.3.1.2.1. Le Trias	19
III.2.3.1.2.2. Le Jurassique	19
III.2.3.1.2.3. Le Crétacé	19
III.2.3.1.3. Le Cénozoïque.....	19
III.2.3.1.3.1 Le Miocène	19
III.2.3.1.3.2. Le Plio-Quaternaire	20
III.2.4 Domaine Tlemcenien, monts de Saida.....	20
III.2.4.1 Lithostratigraphie des monts de Saida.....	20
1. Primaire.....	21

2. Mésozoïque.....	21
3. Le Jurassique.....	21
4. Crétacé.....	21
5. Le Néogène et le Quaternaire.....	21
IV. Conclusion.....	22

CHAPITRE II

Les systèmes hydrothermaux du Nord-Ouest algérien : cadre morpho-structural et hydrogéologique

I. Introduction.....	23
II. Inventaire des sources thermales du Nord-ouest algérien.....	23
III. Relation systèmes hydrothermaux, tectonique et éléments structuraux.....	25
III.1. Les éléments structuraux du nord-ouest-algérien.....	25
III.1.1 Relation source thermique-linéaments géographique.....	27
III.1.2 Relation source thermique-faille.....	31
III.1.3 Relation source thermique-sismicité.....	33
IV. Hydrogéologie du Nord-Ouest algérien.....	35
IV.1 Identification hydrogéologique des systèmes hydrothermaux de l'Algérie nord occidentale.....	36
1. Le Trias.....	36
2. Le Jurassique.....	37
3. Le Crétacé.....	38
4. Le Néogène.....	38
5. Le Quaternaire.....	38
IV.2 Répartition des sources thermales du Nord-Ouest algérien.....	38
IV.3 Conditions d'émergences des sources thermales.....	40
IV.3.1 Les sources thermales liées au Bas Chélif (BC).....	40
IV.3.2 Les sources thermales du littoral (LI).....	41
IV.3.3 Les sources thermales liées au Bassin de la Tafna (BT).....	43
IV.3.4 Les sources du domaine Tlemcenien (DMT) (Saida).....	43
V. Conclusion.....	44

CHAPITRE III

Hydrogéochimie des eaux thermales

Introduction.....	46
I. Matériel et Méthodes	47
II. Caractéristiques physico-chimiques des eaux.....	47
II.1 Etude des paramètres physiques.....	47
II.1.1 La température.....	47
II.1.2 La conductivité électrique (CE)	49
II.1.3 la minéralisation.....	49
II.1.4 Potentiel hydrogène pH.....	51
II.2 Etude des paramètres chimiques.....	51
II.2.1. Répartition spatiale des éléments majeurs.....	54
II.2.1.1 Le Calcium.....	54
II.2.1.2 le Magnésium.....	55
II.2.1.3 Le Sodium.....	56
II.2.1.4 Le Potassium.....	57
II.2.1.5 Les Chlorures.....	57
II.2.1.6 Les Sulfates.....	58
II.2.1.7 Les Bicarbonates.....	59
II.2.2. Les éléments traces.....	60
II.2.2.1 Teneurs en éléments traces dans les eaux thermales.....	60
II.3 Faciès chimique des eaux.....	63
III. Classification hydrochimique des eaux souterraines.....	63
III.1 Diagramme de STABLER.....	64
III.2 Diagramme de PIPER et diagramme ternaire Cl^- - SO_4^{2-} - HCO_3^-	65
IV. Processus d'acquisition de la minéralité des eaux.....	66
IV.1 Analyses statistiques multivariées.....	66
IV.1.1 Matrice de corrélation.....	66
IV.1.2 Application de la méthode de classification hiérarchique.....	68
IV.2 Diagrammes binaires.....	70
IV.2.1 Na^+ versus Cl^-	70

IV.2.2 Na ⁺ /Cl ⁻ versus Ca ²⁺ / (HCO ₃ ⁻ +SO ₄ ²⁻).....	71
IV.2.3 Calcium versus Sulfate	72
IV.2.4 Calcium versus Bicarbonates	73
IV.2.5 Na ⁺ /Cl ⁻ versus HCO ₃ ⁻ /Ca ²⁺ +SO ₄ ²⁻	74
IV.3 Éléments traces.....	75
IV.3.1 Strontium.....	75
IV.3.2 Lithium, Rubidium et Arsenic.....	76
IV.4 Indices de saturation.....	79
Conclusion.....	83

PARTIE II

Caractérisation de la radioactivité et des radionucléides dans les systèmes hydrothermaux du Nord-Ouest algérien : méthodologies d'analyse, étude des isotopes du Radium et du Radon dans les eaux, et impact des sulfates sur la géochimie du Radium

CHAPITRE IV

Radioactivité, et Radionucléides, principe et méthodologie d'analyse

Section 1

I. Introduction.....	85
II. Radiation naturel et processus de désintégration radioactive.....	86
III. Désintégration radioactive.....	86
III.1 La désintégration alpha (α)	88
III.2. La désintégration beta (β^-).....	89
III.3 L'émission de rayons gamma (γ)	89
III.4 Décroissance et la loi de désintégration radioactive.....	90
III.5 L'unité de la radioactivité.....	91
III.5.1 L'activité spécifique.....	92
III.5.2 Dose équivalente de radiation.....	93
IV. Hydrogéochimie des radionucléides, teneur et mobilité radio-isotopique dans les eaux souterraines.....	93

IV.1. Les radionucléides comme traceurs environnementaux.....	94
IV.2 Hydrogéochimie de l'U et Th dans les eaux.....	95
IV.3 Propriétés Hydrogéochimique du Radium et de Radon.....	98
IV.3.1 Le Radium.....	98
IV.3.2 Paramètres influençant la teneur en Ra des eaux.....	100
IV.3.3 Le Radon.....	101
IV.2.3.1 Origine du Radon, ses applications et sa teneur dans les eaux	102
IV.2.3.1.1. Origine.....	102
IV.2.3.2.2. Applications.....	102
IV.2.3.2.3. Teneur en Radon dans les eaux.....	103
V. Conclusion.....	104

Section 2

I. Introduction.....	106
II. Technique d'échantillonnage, instrumentation et méthode analytique (Laboratoire Avignon LHA)	107
II.1 Échantillonnage radium et radon de l'eau.....	107
II.2 Mesure du ²²⁴ Ra, ²²³ Ra par le RaDeCC.....	108
II.2.1 Description de la technique de détection (RaDeCC)	108
III. Comptage par RaDeCC.....	110
III.1 Mesure de bruit du fond (background).....	110
III.2 Enregistrement du signal et discrimination.....	111
III.3 Analyse des échantillons.....	112
III.4 Protocole de comptage.....	113
III.5 Calcul et traitement des données d'analyses.....	114
IV. Méthode de mesure ²²² Rn et ²²⁶ Ra par le RAD7.....	116
IV.1 Le système Rad7 (Rad-H ₂ O) et mesure de Radon.....	116
IV.1.1 Protocole de mesure.....	118
IV.2 Analyse et mesure de radium longue demie de vie (²²⁶ Ra)	120
IV.2.1 Protocole de mesure.....	121
V. Conclusion.....	121

CHAPITRE V

Le Radon et les isotopes du Radium dans les eaux thermales, Contrôle hydrochimique, résultats et interprétations

I. Introduction.....	123
II. Les principaux résultats de la radioactivité des eaux thermales.....	125
II.1 Radioactivité des isotopes à courte demi-vie.....	125
II.1.1. ^{223}Ra	125
II.1.2. ^{224}Ra	127
II.1.3. ^{222}Rn	128
II.2 Radioactivité des isotopes à longue demi-vie.....	129
II.2.1 ^{226}Ra	129
II.2.2 ^{228}Ra	130
III. Comparaison de la radioactivité des eaux thermales algériennes aux autres eaux thermales dans le monde.....	132
IV. Les déséquilibres radioactifs par les rapports d'activité isotopique.....	135
IV.1 Contrôle géologique des radionucléides dans les systèmes hydrothermaux.....	135
IV.1.1 Rapport d'activité Radium- Radon et relation entre les radio-isotopes.....	136
IV.1.1.1 Rapport d'activité $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$ et ^{222}Rn versus les isotopes du Radium.....	136
IV.1.1.2 Rapport d'activité $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ et ^{228}Ra vs ^{226}Ra	141
IV.1.1.3 Rapport d'activité $^{224}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$ et ^{224}Ra vs ^{228}Ra	144
IV.1.1.4 Rapport d'activité $^{223}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ et ^{223}Ra vs ^{226}Ra	147
V. Contrôle des radionucléides par processus hydrogéochimique.....	148
V.1 Distribution et mobilité du radium.....	149
V.1.1 Relation, radionucléides, température et acidité de l'eau.....	149
V.1.2 Processus de la salinité et les éléments majeur sur les radionucléides.....	152
VI. Relation, tectonique et l'occurrence de la radioactivité.....	157
VII. Conclusion.....	160

CHAPITRE VI

Impact des composés de sulfate sur la géochimie du radium dans les systèmes hydrothermaux

I. Introduction.....	162
II. Les composés insolubles de sulfates.....	163
III. L'effet de Sulfate et de Baryum sur la mobilité du Radium.....	165
III.1 Les isotopes du Radium vs Baryum.....	166
IV. Impact des composés insolubles de sulfates sur la mobilité du Radium.....	167
IV.1 Relation : Isotopes du Radium - Barytine (BaSO_4).....	167
IV.2 Relation : Isotopes du Radium - Célestine (SrSO_4)	169
IV.3 Relation : isotopes du Radium - Anglésite (PbSO_4).....	170
V. Risque sanitaire lié à l'exploitation des eaux riches en radioactivité du Ra et Rn	173
VI. Conclusion	175

Synthèse et conclusion générale

Conclusion générale, synthèse et modèle conceptuel du comportement des radionucléides 176

Références bibliographiques..... 182

Résumé

Les ressources en systèmes hydrothermaux en Algérie sont abondantes, avec plus de 200 sources réparties à travers le nord du pays. Dans ce travail, ce sont 16 sources thermo-minérales du Nord-Ouest de l'Algérie, qui ont fait l'objet de notre étude. La circulation de ces eaux se fait principalement à travers des failles et des fractures. Cette étude est la première enquête sur l'occurrence naturelle des isotopes du Radium et du Radon dans les eaux thermales algériennes. Elle vise à mieux comprendre les contrôles géologiques et hydrogéochimiques des isotopes à vie courte et longue du radium (Ra) et du radon (Rn).

La température de l'eau varie de 29,4 à 69,1°C, tandis que le pH est globalement neutre à faiblement acide pour quelques échantillons. L'analyse hydrochimique a révélé trois types d'eau principaux : $Cl^- - Na^+$, $SO_4^{2-} - Na^+ - Ca^{2+}$, et $HCO_3^- - Ca^{2+} - Mg^{2+}$. La chimie des eaux est principalement contrôlée par la dissolution des carbonates et des évaporites, en particulier l'halite.

Les concentrations d'activité de Ra et Rn ont été mesurées pour 16 sources thermales à l'aide de techniques de mesure très sensibles (RadeCC et Rad7). Les échantillons ont montré des activités élevées pour le ^{222}Rn , le ^{224}Ra et le ^{226}Ra , avec des valeurs allant jusqu'à 377×10^3 Bq/m³, 730 Bq/m³ et 4367 Bq/m³, respectivement. Les activités de radionucléides dans les sources thermales du nord-ouest de l'Algérie se sont avérées plus élevées que dans d'autres pays. Le rapport d'activité $^{228}Ra/^{226}Ra$ indique une origine carbonatée de la radioactivité de l'eau. Le rapport $^{222}Rn/^{226}Ra$ suggère que les eaux peuvent être mélangées avec des eaux proches de la surface.

Les résultats indiquent que l'excès de SO_4^{2-} limite la concentration aqueuse de Ba et, par conséquent, les activités élevées de radium dans les systèmes hydrothermaux du nord-ouest de l'Algérie ne sont pas principalement contrôlées par la co-précipitation avec $BaSO_4$. Cependant, le $SrSO_4$ peut partiellement limiter les concentrations du radium dans les eaux. L'abondance minimale de contenu minéral argileux dans l'aquifère, en plus des activités thermiques, améliore considérablement la mobilisation de Ra en solution. Étant donné que ces eaux sont parfois utilisées pour la boisson, 50% des sources étudiées présentent des activités de Ra combiné à longue durée de vie ($^{226}Ra + ^{228}Ra$) dépassant le niveau maximal de contaminant (MCL) de l'OMS et de l'EPA pour l'eau potable.

Mots clés : Source thermale ; Hydrochimie ; Nord-Ouest algérien ; Sulfate ; Radioactivité ; Radium ; Radon

Abstract

The resources of Algeria hydrothermal systems are numerous. More than 200 natural hydrothermal springs are widespread throughout the northern Algerian territory. Hydrothermal resources in Algeria are abundant, with over 200 sources distributed in the north of the country. This study focuses on those located in the northwest of Algeria, which are characterized by a great diversity of geothermal manifestations. The circulation of these waters is mainly through faults and fractures. This study differs from previous hydrogeological studies of thermal waters in Algeria, as it presents the first geochemical investigation into the natural occurrence of radium and radon isotopes in Algerian hydrothermal waters. It aims to understand the geological and hydrogeochemical controls of short- and long-lived radium isotopes.

The water temperature varies from 29.4 to 69.1°C, while the pH is almost neutral to slightly acidic for some samples. Hydrochemical analysis revealed three main types of water: $Cl^- - Na^+$, $SO_4^{2-} - Na^+ - Ca^{2+}$, et $HCO_3^- - Ca^{2+} - Mg^{2+}$. The chemistry of the waters is mainly controlled by the dissolution of carbonates and evaporites, particularly halites.

Activity concentrations of Ra and Rn were measured for 16 hydrothermal sources using highly sensitive measurement techniques (RadeCC and Rad7). The samples showed high activities for ^{222}Rn , ^{224}Ra , and ^{226}Ra , with values up to 377×10^3 Bq/m³, 730 Bq/m³, and 4367 Bq/m³, respectively. Radionuclide activities in hydrothermal sources in northwest Algeria were found to be higher than in other countries. The $^{228}Ra/^{226}Ra$ activity ratio indicates a carbonate origin of water radioactivity. The $^{222}Rn/^{226}Ra$ ratio suggests that the waters may be mixed with shallow groundwater.

The results indicate that excess SO_4^{2-} limits the aqueous concentration of Ba and, therefore, the high radium activities in hydrothermal systems in northwest Algeria are not primarily controlled by co-precipitation with $BaSO_4$. However, $SrSO_4$ may partially limit radium concentrations in the waters. The minimal abundance of clay mineral content in the aquifer, in addition to thermal activities, significantly enhances Ra mobilization into solution. As these waters are sometimes used for drinking, 50% of the studied sources exhibit combined long-lived Ra ($^{226}Ra + ^{228}Ra$) activities exceeding the maximum contaminant level (MCL) of WHO and EPA for drinking water.

Keywords: Hydrothermal spring; Hydrochemistry ; Sulfate ; Northwestern Algeria ; Radioactivity ; Radium ; Radon

المخلص

تتعدد موارد الأنظمة الحرارية المائية في الجزائر. ينشر أكثر من 200 منبع طبيعي مائي معدني حراري في جميع أنحاء التراب الجزائري الشمالي. هذه الدراسة ركزت على تلك الموجودة في الجزء الشمالي الغربي من الجزائر الذي يتميز بالعديد من مظاهر الطاقة الحرارية الأرضية. يتم تصريف هذه المياه من العمق إلى السطح بشكل أساسي عبر الصدوع والكسور. يشكل غير مألوف عن الدراسات الهيدروجيولوجية للمياه الحرارية في الجزائر، تختلف هذه الدراسة لهذه الموارد نوعاً ما. يقدم هذا العمل أول تحقيق جيوكيميائي عن التواجد الطبيعي لنظائر الراديوم والرادون في المياه الحرارية المائية الجزائرية. تهدف الدراسة إلى فهم الضوابط الجيولوجية والهيدروجيائية للنظائر قصيرة العمر وطويلة العمر للراديوم (الرادون 222، الراديوم 223، الراديوم 224، الراديوم 226 والرادون 228). تتراوح درجة حرارة الماء من 29.4 إلى 69.1، وبالنسبة لغالبية العينات يكون الرقم الهيدروجيني للماء قريباً من الحياد. كشفت التحليل الهيدروجييميائي للماء عن ثلاثة أنواع رئيسية من الماء مياه كلورية، مياه كبريتية ومياه بيكربونات. يتم التحكم في كيمياء المياه بشكل أساسي عن طريق إذابة الكربونات والمتبخرات.

تم استخدام تقنيات قياس عالية الحساسية للكشف عن أنشطة الرادون والراديوم (Rad و RaDeCC) لسعة عشر منبع مائي معدني حراري. أظهرت العينات أنشطة عالية لا سيما بالنسبة للرادون 222، الراديوم 224 والراديوم 226 (حتى 377×10^3 بيكريل / م³ و 730 بيكريل / م³ و 4367 بيكريل / م³ على التوالي). تتفق أنشطة النويدات المشعة في النبايع الحرارية المائية في شمال غرب الجزائر أنشطة النبايع الحرارية الأخرى في العالم. الاختلال الإشعاعي بين العناصر باستخدام نسبة نشاط الراديوم والرادون كبير نسبياً، مما يشير إلى تأثير جيولوجيا الخزان على تراكيز النشاط الإشعاعي. نفس الشيء مع نتيجة الذوبان الكيميائي، تشير نسبة الراديوم 228/الراديوم 226 إلى أصل الصخور الكربونية للنشاط الإشعاعي للماء. الراديوم 226 يمكن أن يتفاعل كيميائياً عكس الرادون، والذي يمكن أن يتسرب بسرعة من خلال الكسور. تشير نسب الرادون 222/الراديوم 226 إلى أنه يمكن خلط المياه الحرارية مع المياه القريبة من السطح. يشير الارتباط الملحوظ بين نظائر الراديوم وملوحة المياه إلى أن عمليات الامتزاج / الامتصاص لا تتحكم في توزيع الراديوم في المياه. تظهر النتائج إلى أن الكبريتات الزائدة تحد من التركيز المائي للباريوم، وبالتالي، فإن أنشطة الراديوم المرتفعة في شمال غرب الجزائر لا يتم التحكم فيها بشكل أساسي عن طريق الترسيب المشترك مع الباريوم. ومع ذلك، قد يحد السيليسين جزئياً من تراكيز الراديوم في المياه. من المحتمل أن تهيمن عملية الارتداد للنويدات الأم في المواد الصلبة للخزان الجوفي على أنشطة الراديوم. إن الحد الأدنى من وفرة المحتوى المعدني الطيني في الخزان الجوفي بالإضافة إلى الأنشطة الحرارية يعزز بشكل كبير من تعبئة الراديوم في المحلول. من وجهة نظر صحية ونظراً لاستخدام هذه المياه في بعض الأحيان للشرب، فإن 50% من النبايع التي تم فحصها أظهرت أنشطة من الراديوم طويل العمر المشترك (الراديوم 226 + الراديوم 228) بما يزيد عن الحد الأقصى لمستوى الملوثات (MCL) لمنظمة الصحة العالمية ووكالة حماية البيئة لمياه الشرب. تم اقتراح نموذج مفاهيمي يلخص العوامل الرئيسية التي تتحكم (الحد / التعزيز) للنويدات المشعة للأنظمة الحرارية المائية في شمال غرب الجزائر.

الكلمات المفتاحية: منبع مياه معدنية حارة ؛ الكبريتات ؛ هيدروجيوكيمياء ؛ النشاط الإشعاعي ؛ الراديوم ؛ الرادون ؛ شمال غرب الجزائر